N° d'Enregistrement
au C.N.R.S. :

THESE

présentée à

l' Université de Paris VI

pour obtenir

Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Jean - Pierre RIVIERE

SUJET DE LA THESE :

Etude critique d'une méthode de mesure du pseudopotentiel cristallin au moyen de la réfraction des électrons rapides dans les prismes.

Soutenue le 20 Juin 1973 devant la commission d'Examen

M. AUTHIER.....Président

MM. HAYMANN.....
PHILIBERT..... } Examinateurs
CROCE.....

PARIS 1973

N° d'Enregistrement
au C.N.R.S. :

THESE

présentée à

l' Université de Paris VI

pour obtenir

Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

Jean - Pierre RIVIERE

SUJET DE LA THESE :

Etude critique d'une méthode de mesure du pseudopotentiel cristallin au moyen de la réfraction des électrons rapides dans les prismes.

Soutenue le 20 Juin 1973 devant la commission d'Examen

M. AUTHIER.....Président

MM. HAYMANN.....
PHILIBERT..... } Examinateurs
CROCE.....

PARIS 1973

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Ce travail a été entrepris dans le Laboratoire de Microscopie et Diffraction électroniques dirigé par Monsieur le Professeur J.J. TRILLAT, Membre de l'Institut. Je le remercie sincèrement de m'avoir accueilli dans son Laboratoire.

Je remercie également, Monsieur le Professeur J. PHILIBERT de s'être intéressé à ce travail et de m'avoir laissé toute facilité pour l'achever.

La direction scientifique de ces recherches a été assurée par Monsieur le Professeur P. HAYMANN. Malgré sa nommination à ROUEN, il a continué à suivre de très près mon travail. Ses séminaires et les nombreuses conversations que j'ai eu avec lui ont largement contribué à ma formation dans le domaine de la théorie dynamique. J'ai le plaisir de lui exprimer ici toute ma reconnaissance.

Je remercie Monsieur le Professeur AUTHIER de s'être intéressé à mon travail et de m'avoir fait l'honneur de présider mon Jury.

Mes remerciements vont également à Monsieur P.CROCE qui a accepté de faire partie de ce Jury.

Il m'est enfin très agréable d'évoquer ici l'attitude amicale du personnel du Laboratoire à mon égard, et je remercie particulièrement Madame BLANES d'avoir tapé cette thèse avec beaucoup de soin et dans un délai très court.

- I -

INTRODUCTION

II

REFRACTION DES ELECTRONS DANS LES PRISMES CRISTALLINS

II.A - FORMULE DE REFRACTION DES ELECTRONS DANS LES PRISMES CRISTALLINS

1. Réfraction dans un dioptre
2. Réfraction dans un prisme
3. Quelques propriétés géométriques de la réfraction des électrons dans les prismes

II.B - LARGEUR DES TACHES REFRACTEES ET PROBLEMES POSES PAR L'ABSORPTION

1. Diffraction de Fraunhoffer dans les prismes absorbants
2. Cas du prisme recouvert de carbone - glissement de la tache par contraste de phase.
3. Calcul du décalage des taches par contraste de phase

- III -

MESURE DE V_g ET V_o EN THEORIE DYNAMIQUE PAR REFRACTION DES ELECTRONS

III.A.1 - Rappels sur la théorie dynamique

2 - Résolution de l'équation de SCHRÖDINGER

III.B - REFRACTION DES ELECTRONS PROVOQUEE PAR L'EXISTENCE DE "POTENTIELS PROPRES"

1 - Réfraction sur le faisceau direct

2 - Réfraction des faisceaux directs et diffractés par les "potentiels propres"

3 - Distorsion de la mesure d'une valeur propre prise sur une direction de diffraction G

4 - Mesure d'une différence de valeurs propres

III.C - CALCUL DE VG A PARTIR DE LA MESURE DES VALEURS PROPRES ET DE LA DETERMINATION DE POSITION DU VECTEUR D'ONDE

./.

1 - Influence de l'erreur sur la position du point d'onde dans la détermination de V_g

2 - Contribution des différentes réflexions systématiques au calcul des "potentiels propres".

- IV -

METHODE EXPERIMENTALE ET RESULTATS

IV.A - METHODE DE MESURE D'UNE VALEUR PROPRE

1 - Mesure de $\frac{2E}{L}$

2 - Mesure de δ

3 - Mesure de $\vec{n}_1 \times \text{tg } i_1 + \vec{n}_2 \times \text{tg } i_2$

IV.B - QUELQUES EXEMPLES DE MESURES DU P.I.M. PAR LA METHODE LOGARITHMIQUE

1 - Mesure du P·I·M dans le KBr

2 - Mesures sur la Calcite

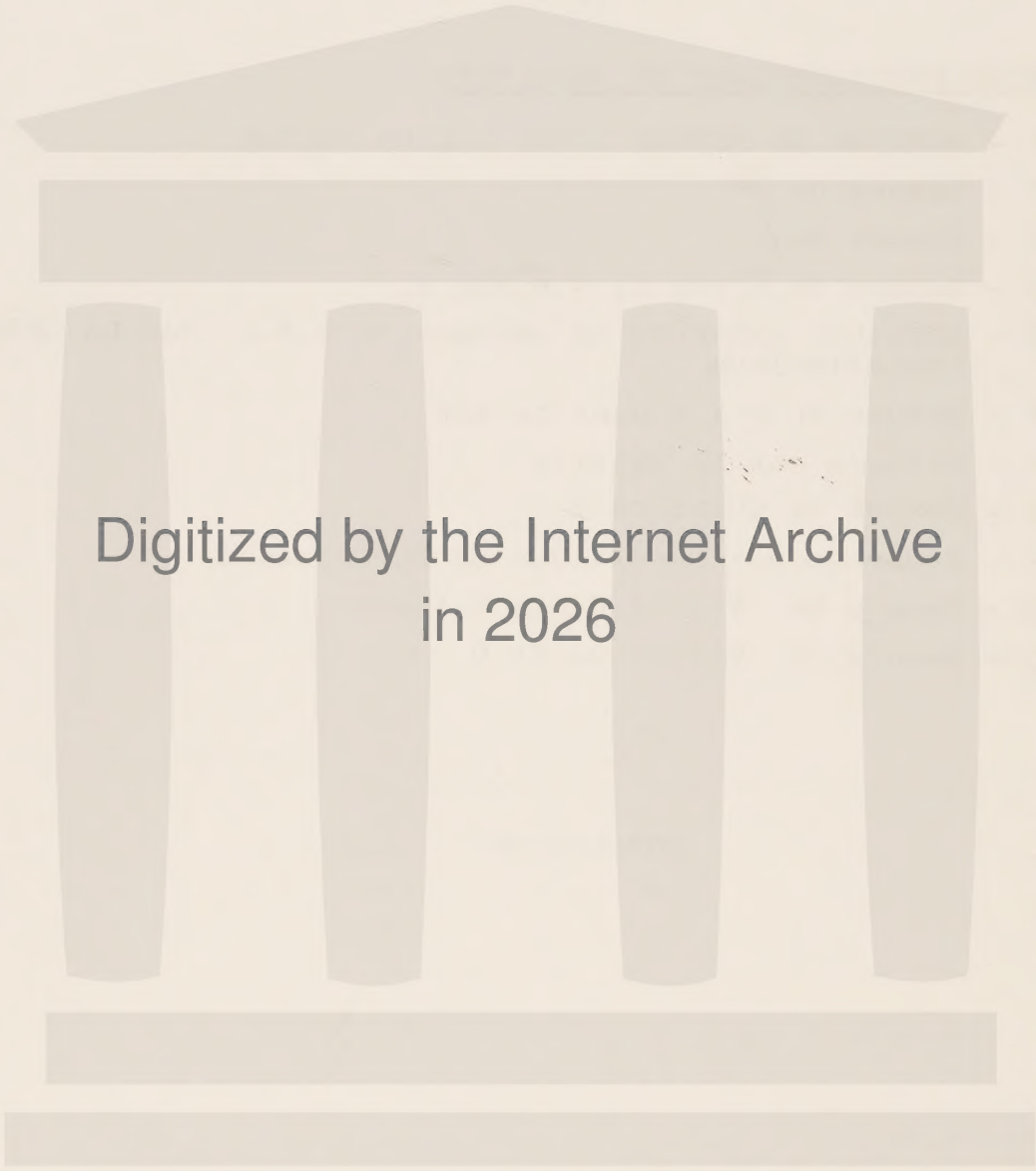
IV.C - MESURE DE QUELQUES V_g

1 - Repérage des conditions de diffraction

2 - Mesure de $V(\bar{2}20)$ de la Calcite

3 - Mesure de $V(200)$ du Ni O

CONCLUSION


Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552718_0029

INTRODUCTION

De nombreux auteurs tels que HONJO et MIHAMA (1954), WALANABE (1956), MOLIERE, LEHMPFUHL (1954-68) MIYAKE (1963) SERNEELS (1971) ont étudié la réfraction des électrons dans les prismes cristallins. Or les angles de réfraction varient comme les valeurs propres de l'équation de SCHRÖDINGER, et les intensités des différents faisceaux diffractés puis réfractés dépendent directement des composantes des différents vecteurs propres. Les diagrammes de diffraction ont donc été pour ces auteurs un outil efficace pour contrôler la théorie dynamique des électrons, et, après coup mesurer le potentiel interne moyen Vo et les composantes de Fourier du pseudopotentiel V_g

Toutefois les expériences ci-dessus ont été effectuées sur des matériaux de choix comme le MgO dont on obtient facilement des prismes par combustion du magnésium, et qui est aisément clivable à l'état massif. Le problème d'écoulement des charges a été maitrisé par UYEDA (1965) qui évapore de l'or sur les faces du prisme sauf au voisinage immédiat de l'arête.

En fait, l'analyse des phénomènes parasites intervenant dans la réfraction, et une étude critique des approximations généralement admises permettent de mesurer le pseudopotentiel de matériaux très divers, car les conditions expérimentales sont désormais moins draconiennes.

La présente étude concerne donc tout d'abord l'aspect géométrique de la réfraction. Elle permet de répondre aux questions suivantes :

- de quel angle peut on approcher l'incidence rasante, si l'on veut utiliser les formules simples qui expriment la réfraction des électrons dans les cristaux ?
- Comment l'inclinaison de l'arête du prisme par rapport au faisceau intervient-elle ?

./.

- quelle distorsion existe-t-il dans la mesure des valeurs propres lorsque l'on passe du faisceau direct au faisceau diffracté ?

Elle fait ensuite intervenir la dérive des pics réfractés du fait des interférences des divers faisceaux réfractés entre eux. Cette partie de l'analyse conduit à la construction d'un système d'abaques en coordonnées polaires qui permettent de déterminer sans aucun calcul l'ordre de grandeur de ces déplacements. Elle montre également comment on peut tenir compte d'un dépôt conducteur sur l'arête du prisme dans la mesure de l'angle de réfraction.

Cette étude concerne enfin les propriétés particulières des valeurs propres $\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$ définissant les champs d'ondes les plus excités lorsqu'on est près des conditions de Laue sur une réflexion donnée. Par exemple $\mathcal{V}_1$ ne dépend pas du couplage des faisceaux faibles entr'eux. En outre les formules analytiques intervenant dans cette étude ont permis de fixer les conditions pour lesquelles l'absorption anormale ne modifie pas $\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$, et de chiffrer l'erreur apportée au calcul de ces valeurs propres par l'imprécision avec laquelle les différents V_g sont connus.

Enfin on propose une méthode expérimentale pour la mesure du pseudopotentiel. Elle a les particularités suivantes :

- les diagrammes de diffraction sont défocalisés : on peut donc repérer à postériori les régions les plus intéressantes de l'échantillon.
- On peut mesurer sur une même photo les intensités de différents champs d'ondes sur un certain nombre de taches.
- l'exploitation des photos conduit à un grand nombre de recoupements. Par exemple, la comparaison des angles de réfraction pour plusieurs incidences du faisceau, permet de déterminer après coup l'angle du prisme, et la mesure des intensités complète les informations

./.

apportées par les lignes de Kikuchi pour déterminer les conditions de diffraction. Ainsi malgré les défaillances d'un appareil déjà ancien, nous avons pu obtenir quelques résultats d'une précision comparable à celle faisant intervenir des conditions expérimentales très sophistiquées. En tout état de cause, si l'on possède une platine goniométrique permettant de régler l'incidence du faisceau a priori, les modalités d'application de la méthode s'en trouvent considérablement simplifiées.

La précision de cette méthode utilisée telle quelle ne prétend pas entrer en compétition avec celle que propose KREUTLE (1971) par exemple, laquelle permet d'exploiter après filtrage de vitesse l'intensité mesurée sur des faisceaux transmis et diffractés par une lame mince d'épaisseur bien définie, mais elle exige des échantillons (ici le silicium) dont on maitrise bien les techniques de préparation, et fait appel à un matériel spécialisé et à des moyens de calcul importants. Toutefois, notre méthode doit rendre service dans de nombreuses études de métallurgie physique où la détermination des pseudopotentiels est susceptible d'apporter des informations utiles, car elle ne nécessite qu'un équipement standard.

Les grandes lignes de l'étude

Examinons maintenant la raison du choix de la réfraction des électrons dans les prismes en vue de mesurer les termes de Fourier Vo , V_{g_i} du potentiel cristallin dans des conditions expérimentales très variées permettant de s'affranchir d'une définition rigoureuse de l'objet.

Faisons tomber un faisceau d'électrons d'énergie eE sur un cristal et supposons que l'on ait n directions de diffractions définies par les vecteurs réciproques g_i caractérisant les plans réticulaires sur lesquels se réfléchissent les électrons. A l'intérieur du cristal, et dans chacune des n directions de diffraction g_i, les électrons se répartiront en n champs d'ondes caractérisés par les valeurs propres $\mathcal{V}_i$ de l'équation de Schrödinger qui décrit le mouvement de l'ensemble des électrons dans le potentiel tripériodique du cristal. Or ces valeurs propres, si on les exprime directement en volts permettent d'accéder à l'énergie cinétique des électrons de chaque champ d'ondes. Sur le faisceau transmis ces énergies valent e $(E + \mathcal{V}i)$, et l'on peut dire qu'à chaque valeur propre correspond un indice de réfraction $n_i = 1 - \frac{\mathcal{V}_i}{2E}$

Si l'on peut trouver des conditions de diffractions pour lesquelles il est possible d'établir une relation biunivoque entre les différences $\mathcal{V}_i - \mathcal{V}_j$ et des termes V_g, on pourra déduire les valeurs des V_g de la mesure des n_i qui sera faite ici à partir de la réfraction des électrons dans les prismes.

La méthode permet alors une décomposition spectrale suffisamment large pour dissocier les différentes actions provenant d'une mauvaise définition de l'échantillon, de préciser et leur influence et leur importance relative.

./.

Finalement l'analyse d'une telle méthode conduit à classer les problèmes en deux démarches distinctes :

- La première consiste à étudier la précision avec laquelle on peut mesurer une valeur propre, donc l'angle de réfraction, c'est le sujet de la partie II.

On y étudiera la validité de la formule simplifiée par laquelle on rend généralement compte de la réfraction des électrons dans les prismes. On évaluera l'imprécision apportée par la diffraction de Fraunhoffer, et l'on décrira le mécanisme par lequel les interférences entre le faisceau réfracté dans le cristal et celui qui est issu d'un éventuel dépôt sur le prisme, ont pour effet de modifier l'angle de réfraction. On verra que cette distorsion est aisément calculable.

Dans la IIIème partie la seconde démarche consistera à déterminer les conditions d'incidence pour lesquelles il est possible de déduire simplement les Vg des V_i. Le principe de la mesure consiste à comparer les valeurs propres expérimentales à celles que l'on a calculé pour une même incidence avec des valeurs approchées de Vg. Il faut alors faire en sorte que la différence entre ces valeurs propres ne soit imputable qu'à un seul terme Vg. Il faut donc étendre au cas général cette propriété qui est rigoureuse en théorie dynamique à 2 faisceaux.

Les problèmes se posent donc :

- au niveau de l'incidence du faisceau sur le cristal : il faut avoir une seule réflexion intense et être en mesure de contrôler les interactions accidentelles.

- au niveau de l'incidence du faisceau sur le prisme : les calculs sont simplifiés si l'on peut considérer que l'incidence est presque normale sur la face d'entrée, en outre dans certaines conditions d'incidence la mesure des valeurs propres sur le faisceau diffracté subit une distorsion que l'on évalue en détail en Annexe II.

./.

- au niveau enfin du calcul des valeurs propres : il s'agit d'abord d'évaluer l'erreur apportée au résultat final par l'inexactitude des termes V_h introduits dans le calcul, puis de voir dans quelles conditions on peut négliger l'absorption anormale et chiffrer la sensibilité des valeurs propres à certaines conditions d'incidence. A l'occasion de ce travail on décrit dans l'annexe III une méthode analytique, basée sur la seonde approximation de Bethe, qui permet d'évaluer rapidement les valeurs propres avec une exactitude généralement acceptable. Cette méthode nous a permis de mettre en évidence le comportement des valeurs propres intenses vis à vis des interactions des faisceaux faibles entr'eux, et vis à vis de l'absorption anormale.

Enfin en IVème partie, on relate quelques expériences et on montre qu'une méthode de diffraction défocalisée facilite le travail en permettant de reconstituer des données auxquelles on a pu avoir accès en raison de la nature de l'échantillon, de l'imperfection de l'appareillage, ou de lacunes dans la réalisation de l'expérience.

PRINCIPALES NOTATIONS UTILISEES EN IIè PARTIE

$\vec{\nu_1}$ $\vec{\nu_2}$ normales aux faces d'entrées et de sorties d'un prisme d'ouverture A

$\vec{n_I}$, $\vec{n_2}$ vecteur unitaire projection sur l'écran de diffraction des vecteurs V_1 et V_2

α_r - - angles de réfraction

α_d - - angle de diffraction de Fraunhoffer

α — — α_r ou α_d lorsqu'aucune équivoque n'est possible

α_o - - direction dans laquelle on observe le faisceau transmis origine : direction du faisceau incident.

μ — — coefficient d'absorption

a - $= \vec{n_1} \text{tgi}_1 + \vec{n_2} \text{tgi}_2$

$\psi(x)$ amplitude de l'onde dans l'espace réel

$\psi(\alpha)$ amplitude de l'onde diffusée dans une direction α par un objet déterminé (dimension : $\psi \times L$)

θ - $= \frac{4\pi}{\lambda \mu a} \alpha$: paramètre simplificateur

- II -

OPTIQUE DE LA REFRACTION DES ELECTRONS DANS LES PRISMES

Dans cette première partie de l'étude on se propose d'évaluer la précision avec laquelle on peut espérer mesurer les angles de réfraction des électrons dans les prismes, donc déterminer le potentiel interne du cristal.

Considérons un prisme d'indice de réfraction voisin de 1. C'est le cas pour la réfraction des électrons rapides d'énergie eE puisque :

$$n = 1 + \frac{V}{2E}$$

n indice de réfraction
V potentiel interne du cristal

On peut exprimer la loi de réfraction sous une forme qui facilite la mise en oeuvre d'une méthode de mesure de Vo. On analysera cette méthode en tenant compte des valeurs habituelles des coefficients d'absorption des électrons dans les cristaux, afin d'évaluer la précision de la mesure des angles de réfraction.

On est parfois obligé de recouvrir l'échantillon de carbone pour écouler les charges, alors se produisent des interférences entre les électrons qui pénètrent dans le cristal et ceux qui traversent le carbone seul, le long de l'arête. Il s'ensuit une translation de la tache par rapport à sa position idéale. Cette translation, on le verra est très aisément calculable, si l'on est capable d'évaluer l'épaisseur de carbone déposée sur l'arête.

./.

II.A - FORMULE DE REFRACTION DES ELECTRONS DANS LES PRISMES CRISTALLINS

1) Réfraction dans un dioptre

La loi de réfraction des électrons dans des prismes cristallins est bien connue (Molière (1954). Reprenons la démonstration que nous avons déjà proposée (1966) afin d'évaluer l'erreur apportée par cette formule lorsqu'on l'utilise (comme ce sera notre cas) dans des conditions où son exactitude pourrait prêter à contreverse.

La réfraction des électrons dans un dioptre vide-cristal est régie par la loi de Descartes sin i = n sin r avec :

$$n \simeq 1 + \frac{V}{2E}$$

i, r angles d'incidence et de réfraction du faisceau
V potentiel interne du cristal
E potentiel accélérateur des électrons.
Mais le fait que $\frac{V}{2E}$ soit de l'ordre de 10^{-4} conduit à une forme simplifiée. La loi de Descartes devient en effet :

$$\sin i - \sin r = \frac{Vo}{2E} \sin r \neq \frac{Vo}{2E} \sin i$$

or $\sin i - \sin r = 2 \cos \frac{i + r}{2} \sin \frac{i - r}{2}$

posons $\alpha = i - r$, angle de réfraction et $\beta = \frac{\pi}{2} - i$, complément de l'angle d'incidence.

Si on est loin de l'incidence rasante :

$\cos \frac{i + r}{2} = \cos i$, d'où la relation simple :

$$\alpha = \frac{V}{2E} \operatorname{tg} i \quad \text{(II-2)}$$

qui peut aussi se mettre sous la forme :

$$\alpha = \frac{V}{2E} \times \frac{1}{\beta} \quad (2') \text{ à l'approche de l'incidence rasante.}$$

Cependant cette dernière relation est généralement fausse car on a :

$$\cos \frac{i + r}{2} = \cos \left(i - \frac{\alpha}{2}\right) \neq \beta + \frac{\alpha}{2} \neq \cos i$$

$$\text{ainsi } \alpha = \frac{V}{2E} \times \frac{1}{\beta + \frac{\alpha}{2}} = \frac{V}{2E} \times \frac{1}{\beta} \times \left(1 - \frac{\alpha}{2\beta}\right) \quad \text{(II 2")}$$

./.

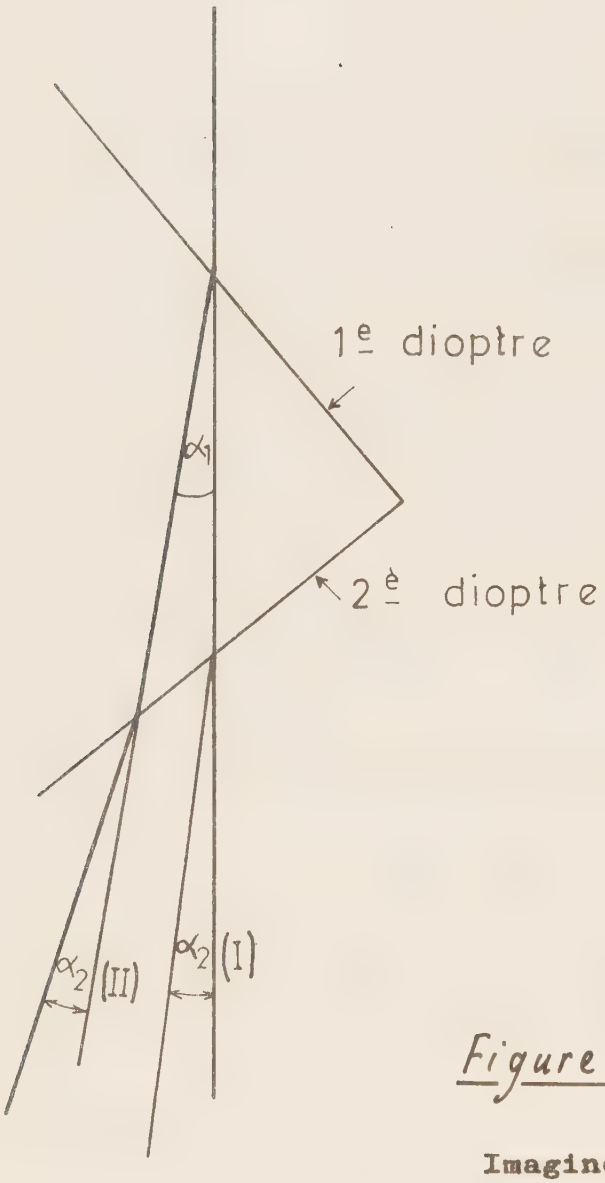
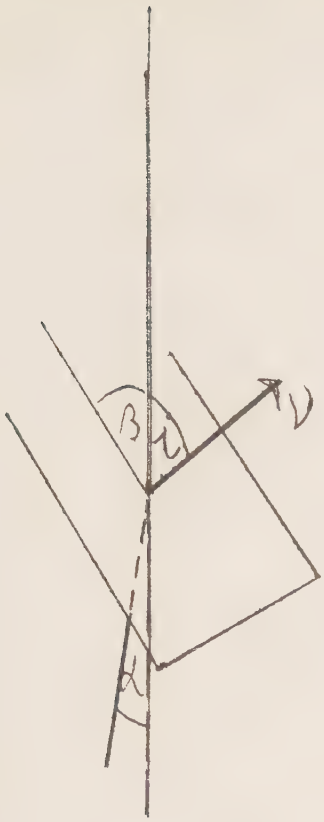


Figure II-1

Imaginons que le second dioptre existe seul, on obtient l'angle de réfraction $\alpha_2(I)$. Si l'on introduit le premier dioptre, la réfraction α_1 ne modifie pas assez l'incidence sur le second dioptre pour que α_2 soit modifié.



On trouve ainsi que la correction à apporter à la formule (II.2) au voisinage de l'incidence rasante s'exprime par la relation.

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = -\frac{V}{2E} \times \frac{1}{2\beta^2}$$

Cette erreur est donc proportionnelle à la valeur de V à mesurer. Donnons à titre d'exemple quelques résultats numériques pour $\frac{V}{2E} = 10^{-4}$ ($V \simeq 15$ volts)

$\beta_{degrés}$	$\frac{\Delta\alpha}{\alpha}$ (%)
10	0,16
5	0,6
4	1

Il sera donc possible d'utiliser couramment la formule (II.2) pour les valeurs de β supérieurs à 5 degrés. Pour les expériences plus fines et pour les petites valeurs de β on pourra prendre la formule (II-2") qui est plus exacte.

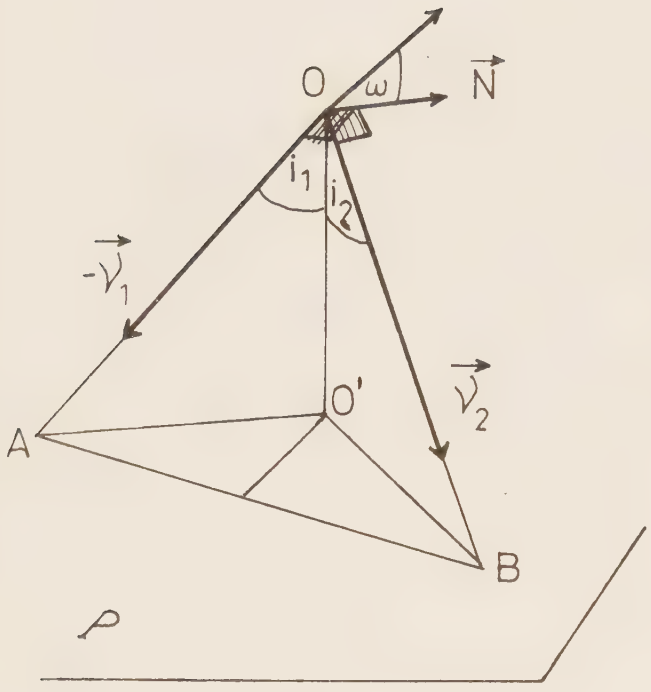
2) Réfraction dans un prisme

Un prisme est constitué par deux dioptres non parallèles. Le faisceau incident est réfracté d'un angle $\vec{\alpha}_1$ au passage du premier dioptre et d'un angle $\vec{\alpha}_2$ après traversée du second, de sorte que la déviation du faisceau à la sortie est donnée par la relation

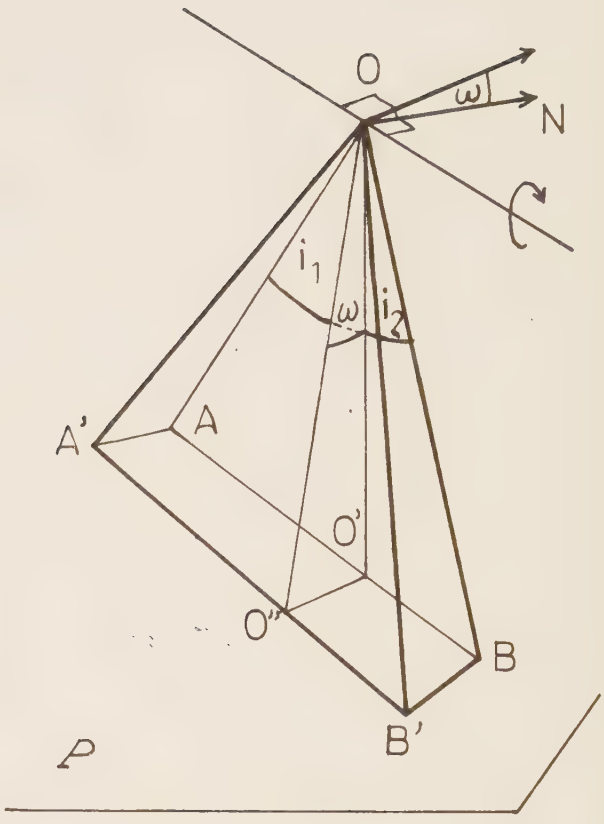
$$\vec{\alpha} = \vec{\alpha}_1 + \vec{\alpha}_2$$

en désignant par α la quantité $\vec{\delta}/|L|$, $\vec{\delta}$ déviation de la trace du faisceau sur un écran situé à une distance L du prisme (nous appellerons $\vec{\delta}$ vecteur réfraction). Or α_2 n'est pratiquement pas modifié par la réfraction dans le premier dioptre (voir fig.III 1.) en effet nous avons montré (1966) que la différence entre α_2(II) et α_2(I) de la figure est fournie par la relation

./.



2



2 bis

Figure II - 2

Analogie géométrique de la relation de réfraction :

$$\alpha = \frac{V}{2E} \times (\vec{n}_1 \operatorname{tg} i_1 + \vec{n}_2 \operatorname{tg} i_2)$$

$$\Delta\alpha_2 = \frac{V}{2E} \times \frac{1}{\cos^2 i_2} \times \alpha_1$$

or on déduit de cette relation que si on est près de l'incidence rasante sur le premier dioptre (α_1 maximum) l'erreur relative sur α a pour ordre de grandeur :

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = \frac{V}{2E} \times \frac{1}{\cos^2 i_2} \qquad (II-3'')$$

Cette quantité ne peut excéder 1/500 dans les cas expérimentaux réalisables. En pratique, on peut donc écrire que la réfraction d'un faisceau par un prisme est fournie par la relation :

$$\alpha = \frac{\vec{\delta}}{|L|} = \frac{V}{2E}\left(\vec{n}_1 \operatorname{tg} i_1 + \vec{n}_2 \operatorname{tg} i_2\right) \quad (II-3)$$

$\vec{n}_1$ et $\vec{n}_2$: vecteurs unitaires, projection sur l'écran des vecteurs $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$ normaux au deux faces du prisme (voir fig. II.2) i_1 , i_2 : angles du faisceau direct avec $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$.

Cette formule est acceptable tant que i_1 ou i_2 n'excèdent pas 85 degrés (cf. II-1)

Remarque : Pour un indice donné la formule (II-3) est symétrique par rapport à i_1 et i_2, or la formule de réfraction dans un prisme quelconque l'est aussi, il s'ensuit que la formule (II-3") calculée pour l'incidence rasante sur la face d'entrée est valable pour l'incidence rasante sur la face de sortie, on remplace alors i_2 par i_1.

3) Quelques propriétés géométriques de la réfraction des électrons dans les prismes

La relation (II-3) suggère la représentation géométrique proposée figure II-2. Considérons $\overrightarrow{OO'}$ un vecteur unitaire parallèle au faisceau incident et normal à un plan P. Situons en O l'origine des vecteurs $-\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$ normaux aux faces du prisme.

./.

Le prolongement de ces vecteurs coupe le plan P en A et B. O'A et O'B représentent donc respectivement tg i_1 et tg i_2 ainsi le vecteur AB est défini par l'expression :

$\vec{n}_1 \, tg\, i_1 + \vec{n}_2 \, tg\, i_2$ ($\vec{n}_1$, projection de $\vec{\nu}_1$ sur P)

Propriétés : En O la normale $\vec{N}$ au plan ($\vec{\nu}_1$, $\vec{\nu}_2$) représente la direction de l'arête du prisme. Il s'ensuit que AB est perpendiculaire à la projection de $\vec{N}$ sur (P) et la direction de réfraction sera toujours perpendiculaire à la projection de l'arête sur l'écran.

Dans le cas où l'arête est normale au faisceau la relation II-3 devient :

$$\alpha = \frac{\delta}{L} = \frac{V}{2E} \left(tg\, i_1 + tg(A - i_1) \right) \qquad (II\text{-}3')$$

en effet sur la figure II-2 les points A, O',B sont alors alignés et l'on a $i_1 + i_2 = A$ (cf. fig. II-2') or il peut être intéressant de connaître la tolérance permise sur cette orientation de $\vec{N}$, pour que (II-3') reste correcte.

Inclinons $\vec{N}$ d'un petit angle ω autour d'un axe parallèle à AB, et passant en O, AB viendra en A' B' le triangle OA'B' sera semblabe à OAB et le rapport de similitude sera $\frac{OO''}{OO'} = \frac{1}{\cos\omega} = 1 + \frac{\omega^2}{2}$. AB augmente de 0,35 % lorsque ω atteint 5 degrés.

En conclusion, à l'approximation 0,4 %, la formule(II-3') restera valable même si l'arête du prisme s'écarte de 5 degrés du plan normal au faisceau incident ; cette propriété sera intéressante à connaître lorsqu'il s'agira d'ajuster l'incidence du faisceau pour obtenir telle ou telle réflexion cristallographique.

Bien entendu, il sera toujours possible de corriger l'expression (II-3') en la multipliant par $1/\cos\omega$

./.

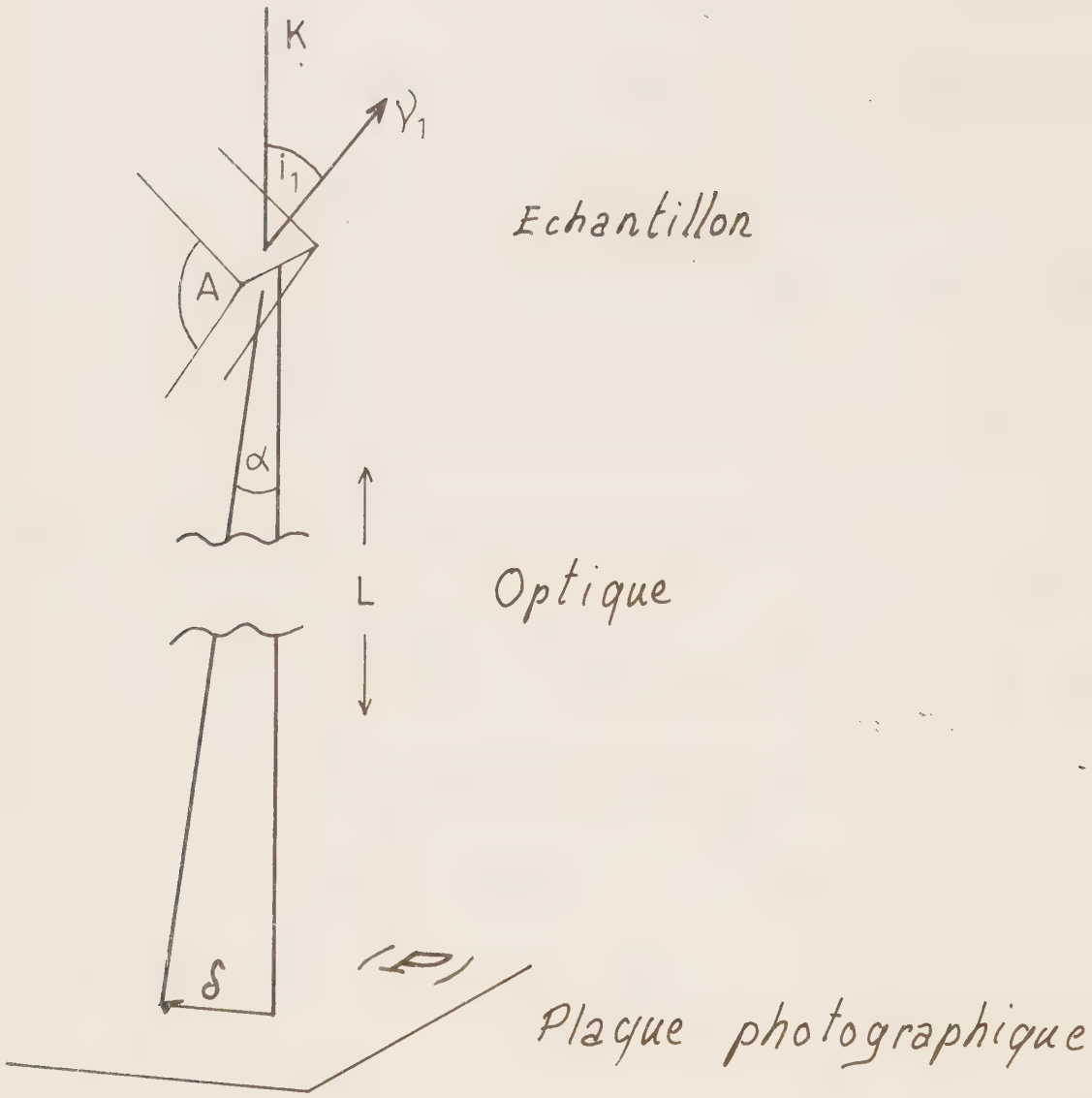

K
γ_1
i_1
Echantillon
A
α
L
Optique
δ
(P)
Plaque photographique

Figure II-3

II.B - LARGEUR DE LA TACHE REFRACTEE ET PROBLEMES POSES PAR L'ABSORPTION

En abordant ce chapitre, donnons le principe de la méthode de mesure.

Un prisme d'ouverture A connue, ou déterminée au cours de l'expérience, dévie légèrement par réfraction le faisceau d'électrons d'un diffracteur (voir fig.II-3). On mesure $\vec{\delta}$ sur la plaque photographique située à une distance L du prisme : on peut donc calculer V en appliquant la formule (II-3), car E est connu et i_1 réglable.

On voit donc que l'erreur $\Delta V/V$ dépend en premier lieu de $\Delta\delta$ largeur de la tache réfractée.

L'erreur de mesure $\Delta\delta$ dépendra essentiellement de l'élargissement de la tache réfractée par diffraction de Fraunhoffer, en effet l'absorption limite à une zone très voisine de l'arête, la partie du prisme traversée par les électrons. Nous allons voir quelles modifications entraine ce phénomène de diffraction qui s'étudie, on le sait, à partir de la transformée de Fourier de la répartition spatiale de l'amplitude de l'onde ψ dans l'objet.

Une seconde source d'erreur apparaît lorsque l'échantillon est recouvert d'une légère couche de contamination, comme nous l'avons indiqué plus haut. Rappelons que les électrons qui traversent le carbone seul, sur le bord de l'arête, interfèrent avec ceux qui ont traversé le cristal. Cela produit un léger glissement de la position de la tache. Ce glissement est très aisé à évaluer si l'on connait l'épaisseur de la couche de contamination.

II.B.1 - Diffraction de Fraunhoffer dans les prismes absorbants

Recourons au principe de la diffraction de Fraunhoffer dans le cas le plus général : celui où il n'est pas possible à priori de distinguer la part de la diffraction de celle de la réfraction dans la déviation α_0 des électrons dans un

./.

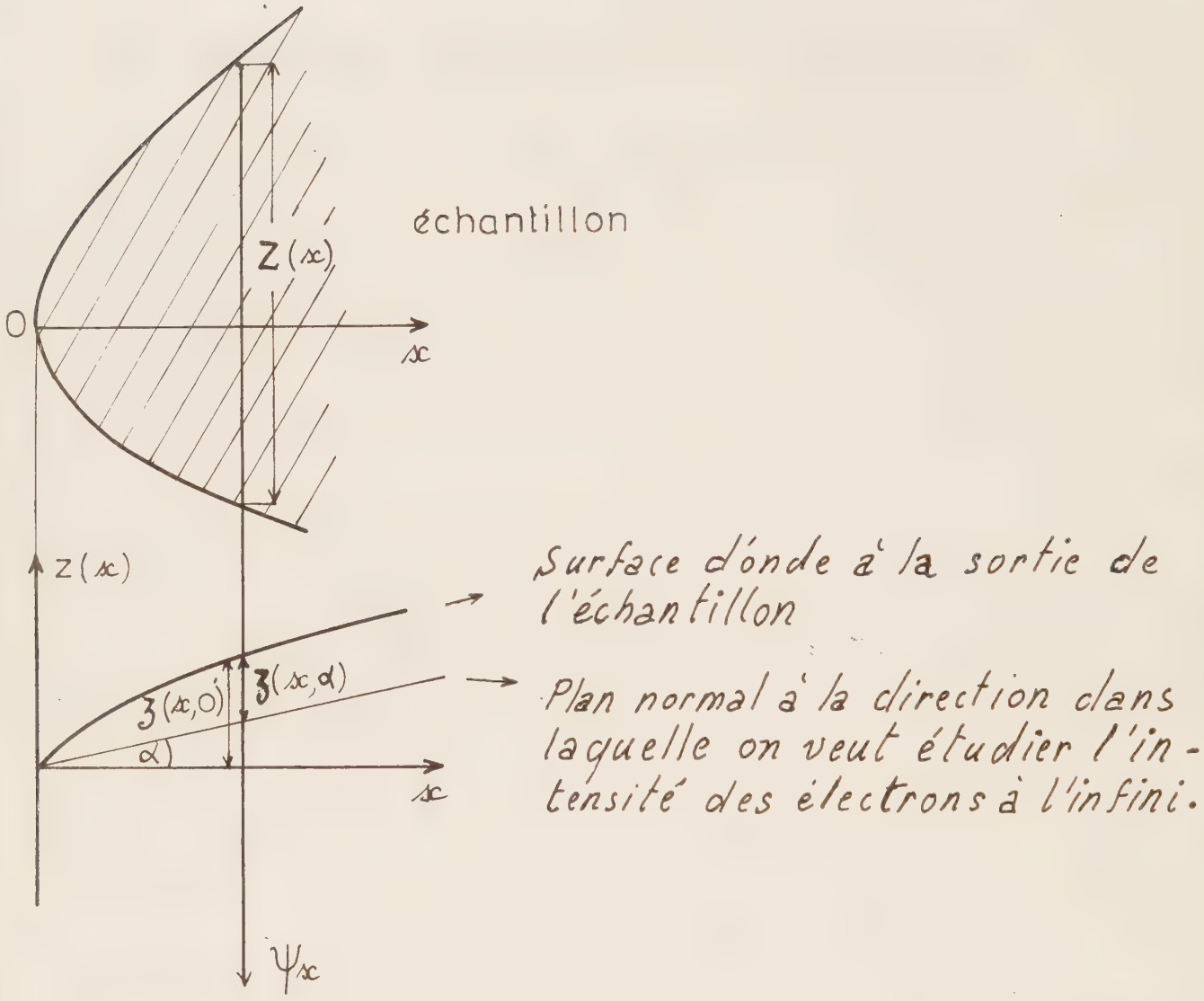


Figure II - 4

Réfraction des électrons dans un échantillon de forme quelconque. En général, la surface d'onde à la sortie de l'échantillon n'est plus plane.

objet absorbant et réfractant. Cela se produit lorsque cet objet a une forme quelconque. La démonstration que nous allons fournir permettra de répondre immédiatement à ce dernier problème et nous servira ultérieurement lorsque nous devrons étudier le rôle de la réfraction dans le carbone susceptible de recouvrir le prisme.

Considérons une forme en coin, non forcément prismatique (Fig.II-4) et prenons pour origine le sommet de ce coin. Sachant que la translation du faisceau par réfraction dans l'objet est toujours négligeable au niveau de cet objet, calculons la forme de la surface d'onde à la sortie. C'est le lieu des points équiphases. L'ordonnée locale de cette surface sera définie par

$$\mathcal{Z} = (n-1)\, Z(x)$$

n : indice de réfraction Z(x) : épaisseur d'échantillon traversée en x.

L'amplitude de l'onde en x est donnée par :

$$\psi(x) = \psi_0\, e^{-\frac{\mu}{2} Z(x)}$$

L'amplitude $\Psi(\alpha)$ à l'infini dans une direction repérée par rapport à la direction du faisceau incident sera donnée par la construction de Fresnel : on ajoute les vecteurs $\psi(x)dx$ en les orientant selon leur différence de phase avec l'onde $\psi(0)$ diffusée dans cette direction α_0. Cette différence de phase est donnée, comme l'indique la figure II-4, par la quantité.

$$\varphi = 2\pi \times \frac{\mathcal{Z}(x,\alpha_0)}{\lambda}$$

$\mathcal{Z}(x,\alpha_0)$ étant la différence de marche entre les ondes $\psi(x)$ et $\psi(0)$ diffusées dans la direction α_0 on a donc :

$$\mathcal{Z}(x,\alpha_0) = \mathcal{Z}(x,0) - \alpha_0 \times x$$

soit $$\Psi(\alpha_0) = \psi(0) \int_0^\infty \psi(x)\, e^{2\pi j \frac{\mathcal{Z}(x,\alpha_0)}{\lambda}} dx$$

./.

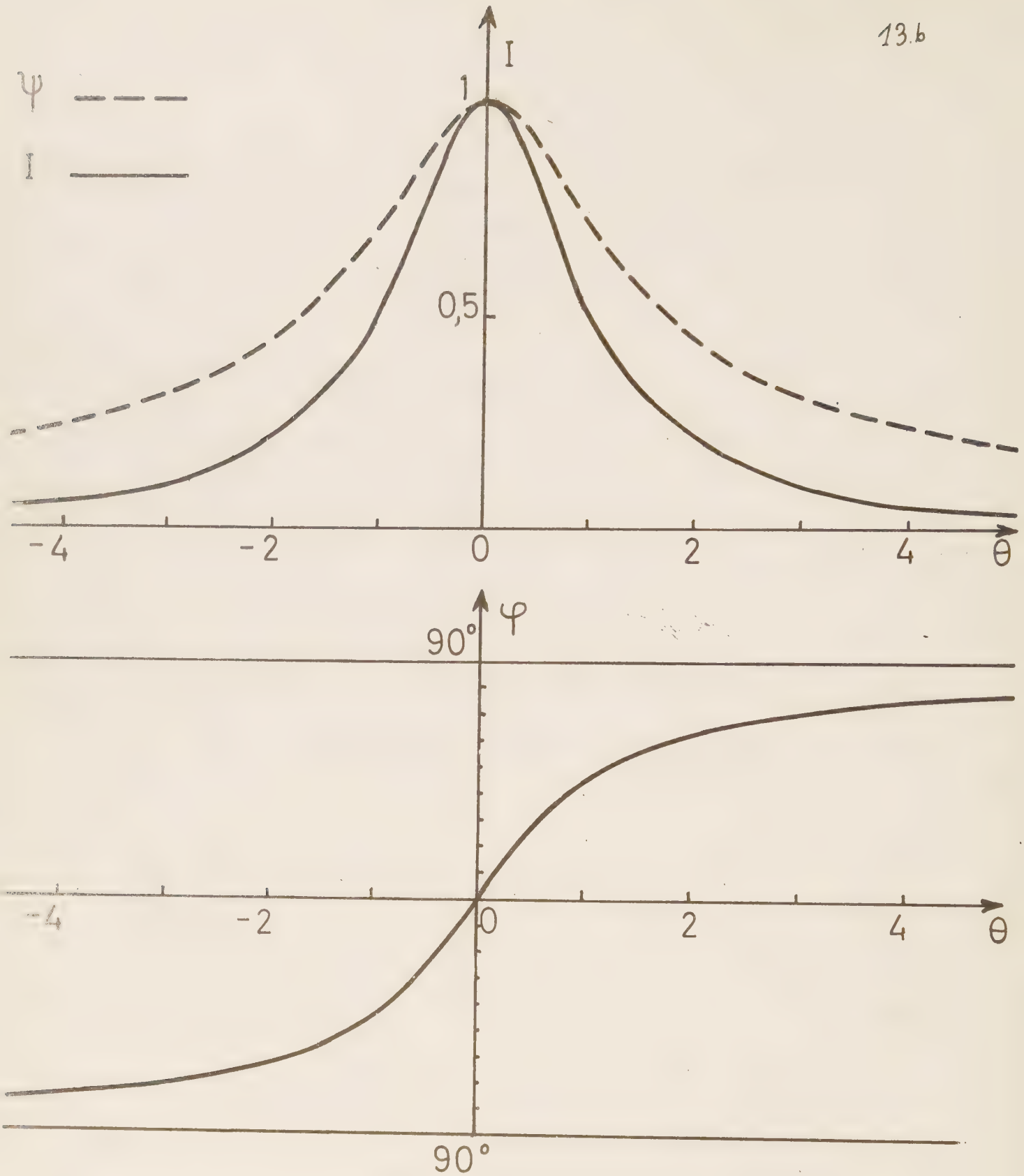


Figure II - 5

Profil de l'intensité I de l'amplitude Ψ et de la phase φ dans le plan du diagramme de diffraction, pour les électrons transmis par un prisme absorbant ; Θ est un angle proportionnel à α angle de diffraction de Fraunhoffer (voir B 3 d)

$$\psi(\alpha_o) = \int_o^\infty e^{\left[-\frac{\mu}{2} Z(x) + \frac{2\pi j}{\lambda} \zeta(x,\alpha_o)\right]} dx \qquad (II-4)$$

Pour le prisme parfait, la solution devient très simple, en effet

$$Z(x) = X \times a \quad (a = tg\, i_1 + tg\, i_2)$$

et

$$\zeta(x,\alpha_o) = \left(\frac{V}{2E} a - \alpha_o\right) x$$

on peut faire $\frac{V}{2E} a - \alpha_o = \alpha$: écart de l'angle d'observation à la direction de réfraction et l'intégrale (II-4) prend la forme simple :

$$\psi(\alpha) = \psi(o) \int_o^\infty exp\left[\left(-\frac{\mu a}{2} + j\,\frac{2\pi\alpha}{\lambda}\right) x\right] dx$$

soit

$$\psi(\alpha) = \frac{\psi_o}{-\frac{\mu a}{2} + j\,\frac{2\pi\alpha}{\lambda}}$$

. d'où le résultat

Lorsque l'on observe à l'infini l'intensité diffractée par un prisme absorbant, dans une direction faisant un angle α avec la direction théorique de réfraction, l'amplitude de l'onde $\psi(\alpha)$ est donnée par la relation

$$\psi(\alpha) = \frac{\psi_o}{\sqrt{\left(\frac{\mu a}{2}\right)^2 + \left(\frac{2\pi\alpha}{\lambda}\right)^2}} \qquad (II-5)$$

et sa phase (comparée à la phase de $\psi(o)$) a pour valeur

$$\varphi = Arctg\, \frac{4\pi\alpha}{\lambda \mu a} \qquad (II-6)$$

Rappelons que cette phase a pour origine la phase de l'onde passant par le sommet O du volume prismatique, laquelle est indépendante de α_o (ondes de Fresnel).

Retenons l'aspect du graphique phase-amplitude de la tache réfractée (fig. II-5) car nous l'utiliserons ultérieurement. Calculons donc la largeur de la tache pour nous rendre compte de la précision que nous pouvons espérer obtenir sur α.

La formule (II-5) fournit le profil d'intensité de la tache réfractée :

$$I(\alpha) = \frac{\psi_o^2}{\left(\frac{\mu a}{2}\right)^2 + \left(\frac{2\pi\alpha}{\lambda}\right)^2} \qquad (II-5\ bis)$$

./.

(Notons que Lehmpfuhl et Molière (1962) ont utilisé cette formule pour mesurer μ_o et μ_g dans le Mg O)

Définissons arbitrairement la largeur de la tache comme étant la distance entre les deux abscisses angulaires pour laquelle la pente $\mathbb{I}(\alpha)$ est maximum (dérivée seconde nulle).

On trouve que la demie largeur angulaire est donnée par :

$$\alpha_d = \frac{a\mu\lambda}{\pi\sqrt{3}}$$

or la théorie dynamique (Molière (1939), Yoshioka (1957)) nous apprend que

$$\mu_o \quad \frac{2\pi V_o'}{E\lambda}$$

ainsi le rapport de α_d à l'angle de réfraction α_r ; qui est proportionnel à l'erreur relative théorique de mesure prendra la forme :

$$\frac{\alpha_d}{\alpha_r} = \frac{a\mu\lambda}{\pi\sqrt{3}} \Big/ \frac{V}{2E}\, a = \frac{1}{\sqrt{3}} \times \frac{V_o'}{V_o} \qquad (II\text{-}7)$$

Retenons de cette relation simple que l'erreur relative due au phénomène d'absorption est indépendante de la forme du prisme et de son orientation dans le faisceau. Elle ne dépend que de l'énergie des électrons dans la mesure où V_o^i en dépend en effet

$$V_o^i(E_1) \times \mathcal{V}(E_1) = V_o^i(E_2) \times \mathcal{V}(E_2).$$

$\mathcal{V}(E)$ vitesse des électrons d'énergie E (Radi 1970)

Remarques : Heidenreich (1964) a donné du potentiel imaginaire une interprétation physique liée à l'incertitude de la mesure de l'énergie des électrons dans le cristal. Cette interprétation apparaît clairement ici puisque

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = \frac{\Delta V}{V} \# \frac{V_i}{V} \qquad (II - 8)$$

Evaluons maintenant l'ordre de grandeur de la précision à attendre de notre méthode lorsque l'on tient compte de ce phénomène: contrairement à ce qui se passe pour le contraste

./.

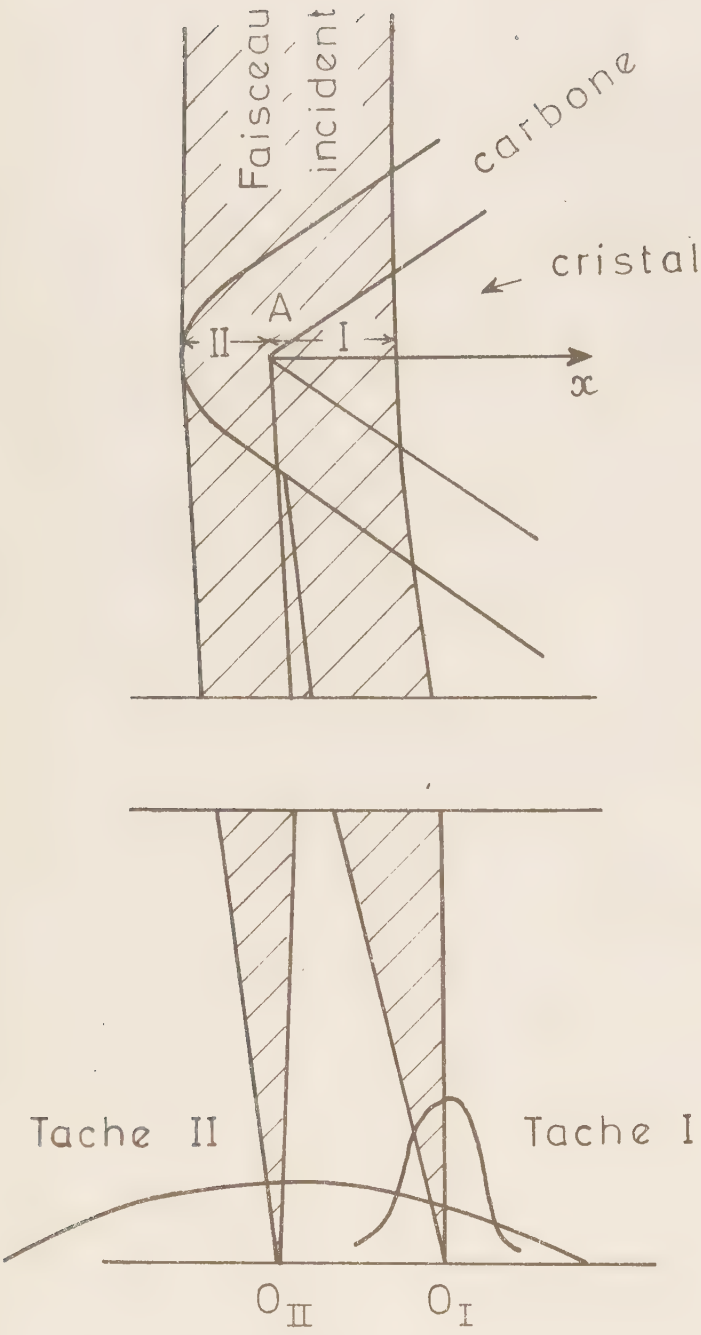


Figure II-6

Les ondes traversant le cristal (Région I) et le carbone (Région II) se chevauchent à l'infini à cause de la diffraction de Traunhoffer et peuvent interférer.

des images, nous devons tenir compte des pertes par plasmon. Dans le coefficient d'absorption moyen en effet la diffusion angulaire des électrons associée à ces pertes d'énergie est supérieure à 10^{-4} radian donc nettement plus importante que la largeur de la tache observée. Or les tables de Radi (1970) nous montre que $\frac{V_o^i}{V_o}$ est alors compris entre $\frac{1}{3}$ et $\frac{1}{10}$, il s'ensuit que α_d/α_R devrait être de l'ordre de $\frac{1}{9}$ pour $V_o^i/V_o = 1/5$ en fait $\Delta\alpha/\alpha$ expérimental est sensiblement plus faible, en effet, si la tache est symétrique on peut fort bien mesurer le $\frac{1}{5}$ de sa demie largeur.

II.B.2 - Cas du prisme recouvert de carbone
Glissement de la tache par contraste de phase

Nous verrons plus loin (IVè partie) qu'un procédé simple pour éliminer les charges de matériaux mauvais conducteurs ou isolants consiste à les recouvrir d'une très légère couche de carbone. Par ailleurs il est très difficile d'éliminer complètement la contamination des échantillons. Nous allons voir que la présence de cette pellicule conduit à une translation de la tache réfractée (000).

Considérons la figure II-6 représentant un prisme recouvert de carbone. Les électrons qui traversent le cristal (région I) sont diffractés selon les relations II-5 et 6 d'où le diagramme phase amplitude $\Psi_I(\alpha_0)$, $\varphi_I(\alpha_0)$ des électrons reportés sur la figure II-7. On peut faire un calcul identique pour les électrons traversant le carbone (région II) en employant la formule (II-4). Le résultat est fourni par la Fig. II-7, où, comme dans la suite du texte, les lettres indicées I concernent la diffraction des électrons issus de la région I, les lettres indicées II concernent la diffraction des électrons issus de la région II (carbone).

Pour comparer les différentes phases entre elles, il faut qu'elles admettent la même origine. Ce sera la phase du rayon émergent passant par A, sommet du prisme.

./.

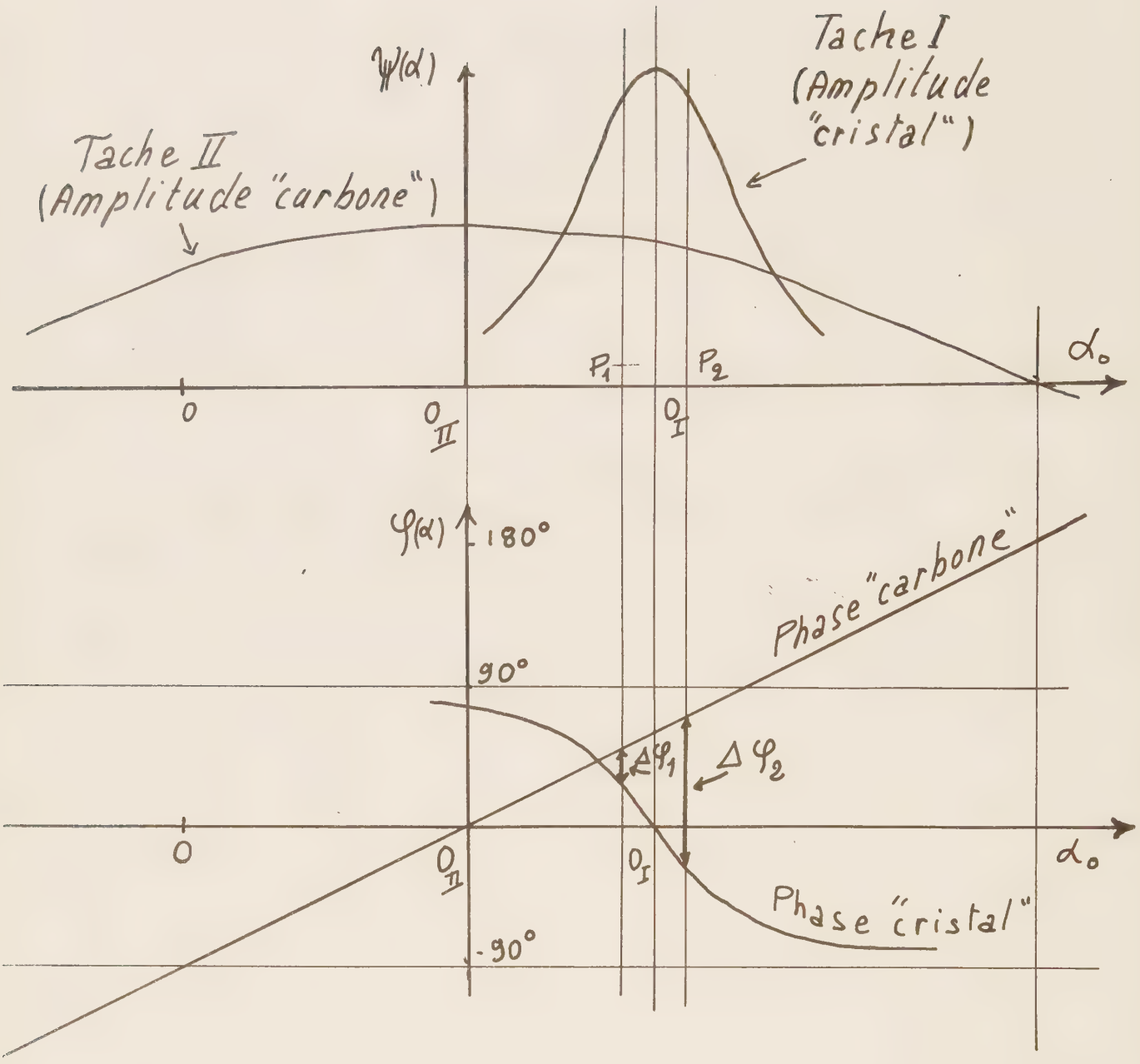
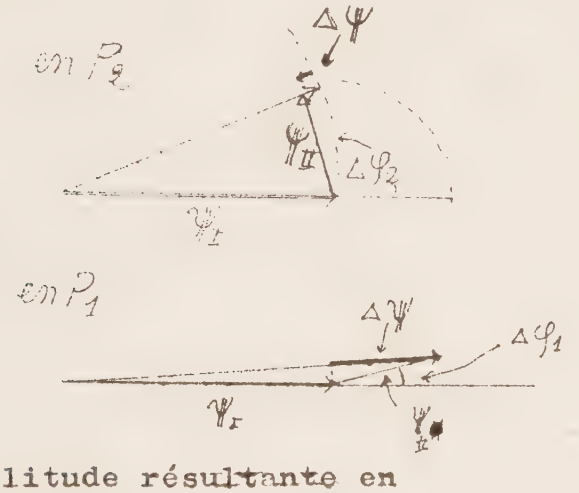


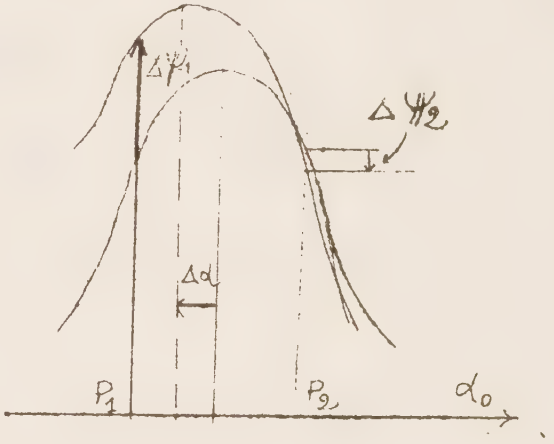
Figure II.7

On peut comparer les phases des ondes diffusées par le cristal $\Psi_I(\alpha)$ et le carbone $\Psi_{II}(\alpha)$ dans une direction α_o donnée

Dans la région où les domaines d'amplitude se recoupent les ondes $\Psi_I(\alpha_o)$ (issues de I) et $\Psi_{II}(\alpha_o)$ interfèrent, ainsi la figure 7 bis fournit l'amplitude résultante au point P1 (de la fig. II-7) puis au point P2 : on ajoute vectoriellement les amplitudes Ψ_I et Ψ_{II} compte tenu de leur différence de phase $\Delta\varphi = \varphi_{II} - \varphi_I$

Choisissons P1 et P2 symétriques par rapport au centre O_I de la tache I, on voit que $\Delta\Psi_I$, différence entre l'amplitude résultante et l'amplitude Ψ_I issue du cristal seul dépend essentiellement de la différence de phase $\Delta\varphi$, car nous verrons que pour des épaisseurs de carbone moyennes, l'amplitude $\Psi_{II}(\alpha)$ (issue du carbone) varie peu sur toute l'étendue de la tache "I" ainsi cet effet de contraste de phase translatera légèrement le profil de la courbe I. Il s'agit donc d'évaluer le plus simplement possible la valeur de cette translation.





Amplitude résultante en P_1 et P_2

Fig. 7 bis - La somme vectorielle des ondes Ψ_I et Ψ_{II} conduit à un déplacement $\Delta\alpha$ du pic résultant par rapport au pic I

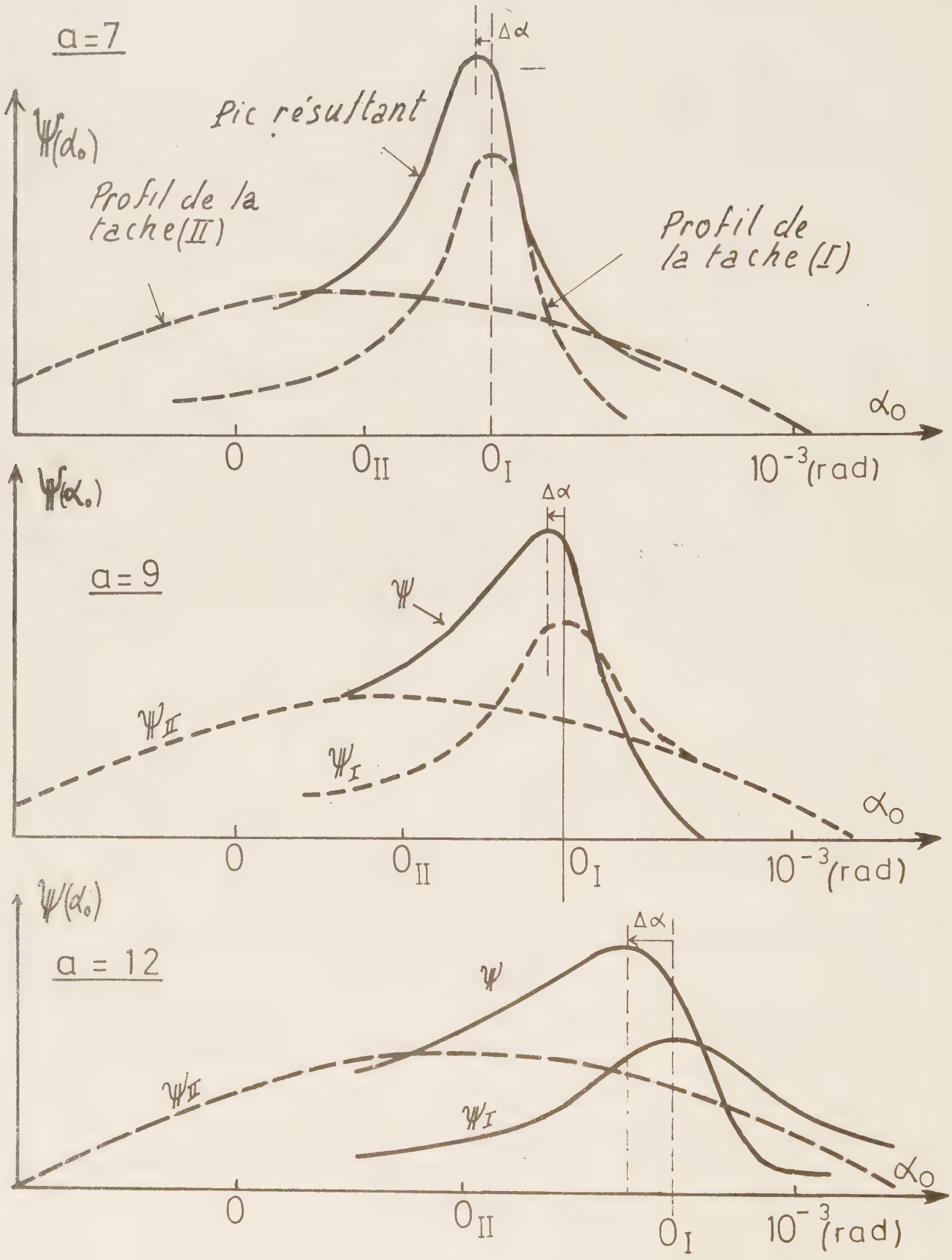


Figure II-8

Profil de l'amplitude résultante $\Psi(\alpha_o)$ des ondes $\Psi_I(\alpha_o)$ et $\Psi_{II}(\alpha_o)$

La diffraction de Fraunhoffer permet de calculer le profil de la tache II et de comparer sa largeur à son déplacement par réfraction. Pour faciliter les calculs, prenons comme hypothèses :

1) que la région II est effectivement constituée par un prisme de carbone d'ouverture A
2) qu'il n'y a pas d'absorption
3) que compte tenu de l'incidence la zone II a une largeur égale à l'épaisseur du dépôt de carbone.

On verra en annexe I que les résultats approximatifs ainsi obtenus peuvent être simplement améliorés. Dans la région II les électrons sont réfractés d'un angle : $\alpha_{II} = \frac{Vc}{2E} \times a$ (Vc : potentiel interne du carbone) et autour de cette direction α_{II}, désignée par le point O_{II} sur les figures II-7 et 8, la figure de diffraction est celle d'une fente de largeur $\mathcal{E}$, et l'on a :

$$\Psi_{II}(\alpha) = \mathcal{E} \frac{\sin \frac{\pi \mathcal{E} \alpha_{II}}{\lambda}}{\frac{\pi \mathcal{E} \alpha_{II}}{\lambda}} = \mathcal{E} \frac{\sin \varphi}{\varphi}$$

dans le cas où $\mathcal{E}$ vaut 70 A°, la figure II-8 fournit les valeurs de $\triangle(\alpha)$ pour différentes valeurs de a. Dans a, en effet interviennent à la fois A : l'ouverture du prisme et i_1 : l'angle d'incidence qui n'ont pas lieu d'être discernés ici. ($a = tg\ i_1 + tg\ (A - i_1)$).

Superposons à ces courbes sur la figure II-8 le profil $\Psi_I(\alpha)$ de la tache réfractée dans le Mg O. On a pris pour coefficient d'absorption, un coefficient obtenu à partir des expériences de Kamiya (1963) $\mathcal{M}_0 = 2{,}5 \cdot 10^{-3} \text{Å}^{-1}$, $V_{II} = 8V$, $V_I = 16\,V$.

Une première constatation peut être faite : même pour des épaisseurs de carbone assez faibles, l'amplitude maximum Ψ_{II} après traversée du carbone est loin d'être négligeable devant celle provenant du cristal. On observe ensuite que $\Psi_{II}(\alpha)$ ne varie pas beaucoup dans le domaine où se trouve la tache I. Lorsqu'il n'en est pas ainsi le profil $\Psi(\alpha)$ résultant

./.

devient très dissymétrique (cas $\alpha = 12$).

Remarquons que le profil de l'intensité de la tache réfractée planche Ib a bien la même allure que les courbes $\Psi(\alpha)$ construites ci-contre.

II.B.3 - Calcul du décalage des taches par effet de contraste de phase

a) Principe

Reprenons la construction vectorielle 7b qui fournit l'amplitude résultante Ψ en α_o en fonction de $\Psi_I(\alpha_o)$ et $\Psi_{II}(\alpha_o)$. Elle peut se mettre sous la forme

$$\vec{\Psi} = \vec{\Psi_I} + (-\vec{\Psi_{II}})$$

et peut être obtenue en faisant apparaître explicitement φ_I et φ_{II} d'où la figure II-9 où le vecteur AB représente

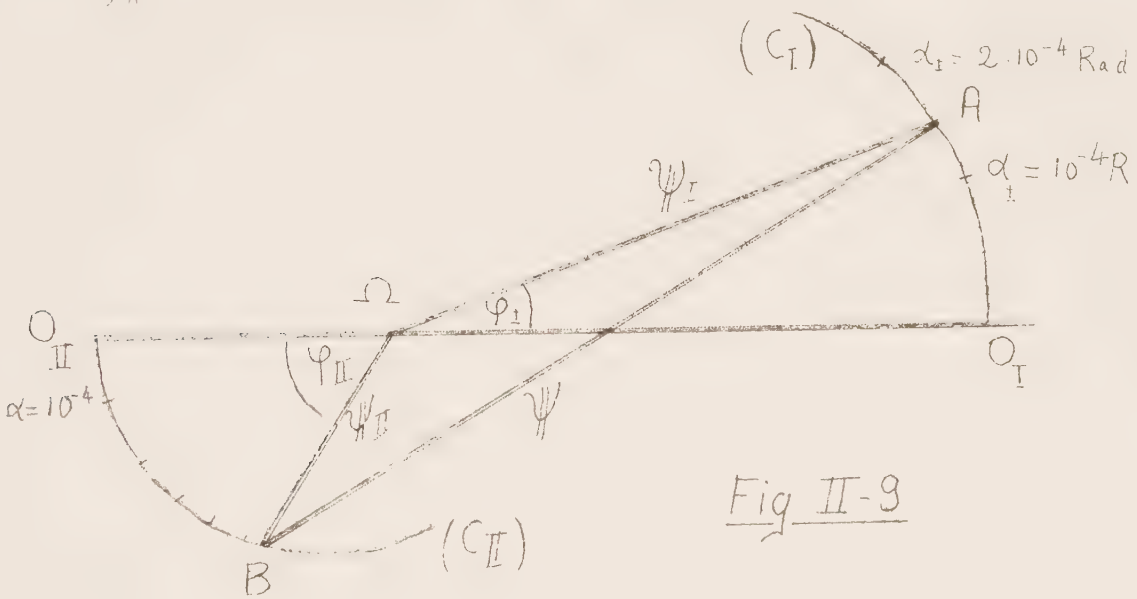


Fig II-9

Or A et B ont des lieux géométriques bien définis. Ils sont donnés par la représentation polaire de $\Psi_I(\varphi_I)$ et $\Psi_{II}(\varphi_{II})$ où les Ψ_I et φ_I dépendent des paramètres α_I et α_{II} reliés entre eux par la relation : $\alpha_1 = \overline{O_I O_{II}} - \alpha_{II}$ (II - 10) comme on le voit sur la figure II-7.

Les valeurs α_I et α_{II} seront prises comme abscisses curvilignes voir fig. II-9 et auront respectivement pour origine O_I et O_{II}.

./.

Proposons nous maintenant d'étudier le profil de l'intensité résultante en fonction de α_1. Nous nous placerons d'abord dans le cas où $\alpha_I = 0$ (centre de la tache I). Ψ_I est alors représenté par un point A de la courbe (C_I) situé sur l'axe origine des φ (soit en O_I) Ψ_{II} est donné par le point B de C_{II} où la graduation α_{II} vaut $O_I\ O_{II}$ de la figure II-7: distance angulaire de la tache "carbone"(II) à la tache "cristal"(I) on obtient ainsi Ψ = AB à l'origine. Déplaçons alors les points A et B en parcourant le même nombre de graduations α conformément à la relation (10) afin de parcourir l'angle $O_I\ O_{II}$. La valeur de α_I pour laquelle Ψ sera maximum (AB(C) stationnaire) fournira le déplacement du pic par effet de contraste de phase.

Nous allons donc dans ce qui suit :

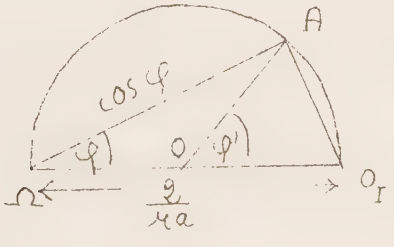
- déterminer les lieux géométriques Ψ_I et Ψ_{II}
- proposer un changement de variable en vue de construire une abaque universelle
- en déduire un procédé simple pour mesurer la dérive du pic, et ainsi la correction que l'on doit apporter à la mesure de V : ΔV
- donner enfin comme application de cette méthode l'ordre de valeur de ce ΔV

b) <u>Lieu géométrique de $\Psi_I(\varphi_I)$ et $\Psi_{II}(\varphi)_{II}$</u>

Pour $\Psi_I(\varphi_I)$ on a un cercle de diamètre $2/\mu a$., en effet

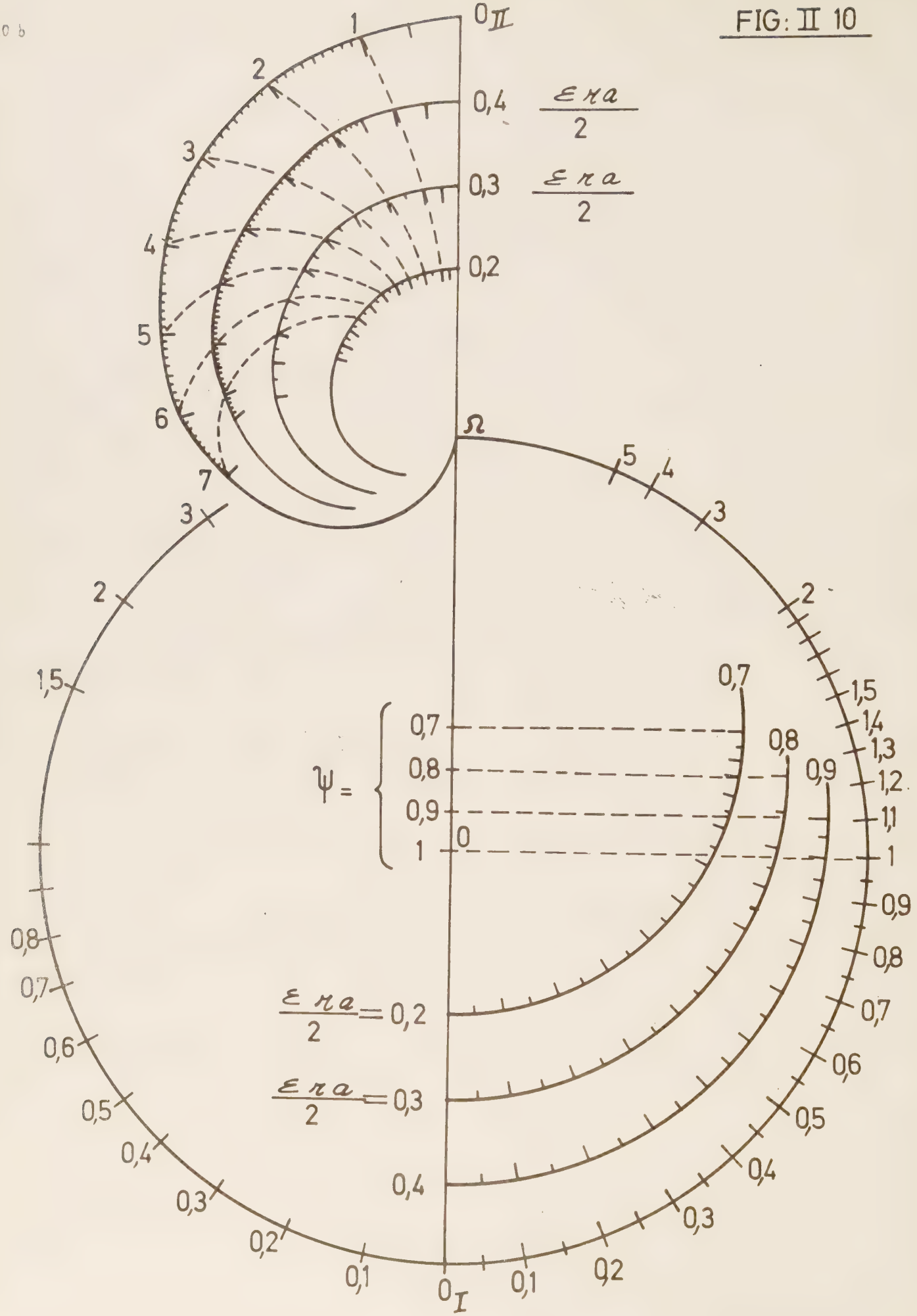
$$\Psi_I(\alpha) = \frac{2}{\mu a} \frac{1}{\sqrt{1+tg^2\varphi}} = \frac{2}{\mu a} \cos\varphi(\alpha)$$

Le vecteur Ψ_I est donc une corde ΩA faisant un angle φ avec le diamètre



./.

FIG: II 10


0 II
1
2
3
4
5
6
7
0,4
$\frac{\varepsilon r a}{2}$
0,3
$\frac{\varepsilon r a}{2}$
0,2
Ω
5
4
3
2
1,5
1
0,8
0,7
0,6
0,5
0,4
0,3
0,2
0,1
0 I
0,1
0,2
0,3
0,4
0,5
0,6
0,7
0,8
0,9
1
1,1
1,2
1,3
1,4
1,5
$\psi =$
0,7
0,8
0,9
1
0
$\frac{\varepsilon r a}{2} = 0,2$
$\frac{\varepsilon r a}{2} = 0,3$

La graduation du cercle en fonction de α est obtenue en faisant

$$\varphi' = 2\varphi = 2\,\mathrm{Arctg}\,\frac{4\pi}{\lambda\mu a}\times\alpha$$

(à l'arc φ est attribué le nombre α)

Pour Ψ_{II} la fonction est de la forme $\varepsilon\,\frac{\sin\varphi_{II}}{\varphi_{II}}$ avec $\varphi_{II} = \frac{\mu\varepsilon}{\lambda}\alpha_{II}$

L'origine des Ψ_{II} est située en Ω et l'origine des φ_{II} sur l'axe des x côté négatif : O_{II} sur la figure

c) Coordonnées réduites

Les facteurs intervenant dans l'expression de Ψ, φ et α sont très nombreux : α dépend notamment de a, E, V pour la réfraction, et de μ et ε pour la diffraction de Fraunhoffer. Chaque cas expérimental exigerait une construction géométrique particulière. Il est donc intéressant d'obtenir un système de coordonnées réduites permettant d'éliminer cette contingence expérimentale.

Comme c'est la dérive du pic I qui nous intéresse, il nous parait commode de fixer le lieu C_I et de faire varier C_{II} en fonction de ε, μ et a. On va donc poser $\Psi_I = 1$ en multipliant toutes les valeurs de Ψ par $\frac{\mu a}{2}$. On fait en outre le changement de variable.

$$\theta = \frac{4\pi}{\lambda\mu a}\times\alpha \qquad (II-12)$$

d) Construction de l'abaque - Figure II-10

La courbe C_I est unique. C'est un cercle de diamètre égal à 1. Ce cercle est gradué en valeurs de θ, on applique pour cela les relations II-11 et 12 ainsi : $\varphi' = 2\,\mathrm{Arctg}\,\theta$

On définit un faisceau de courbes C_{II} pour des valeurs de $\frac{\varepsilon\mu a}{2}$ allant de 0,2 à 0,5. Le profil prend la forme

$$\frac{\varepsilon\mu a}{2}\,\frac{\sin\varphi}{\varphi}$$

./.

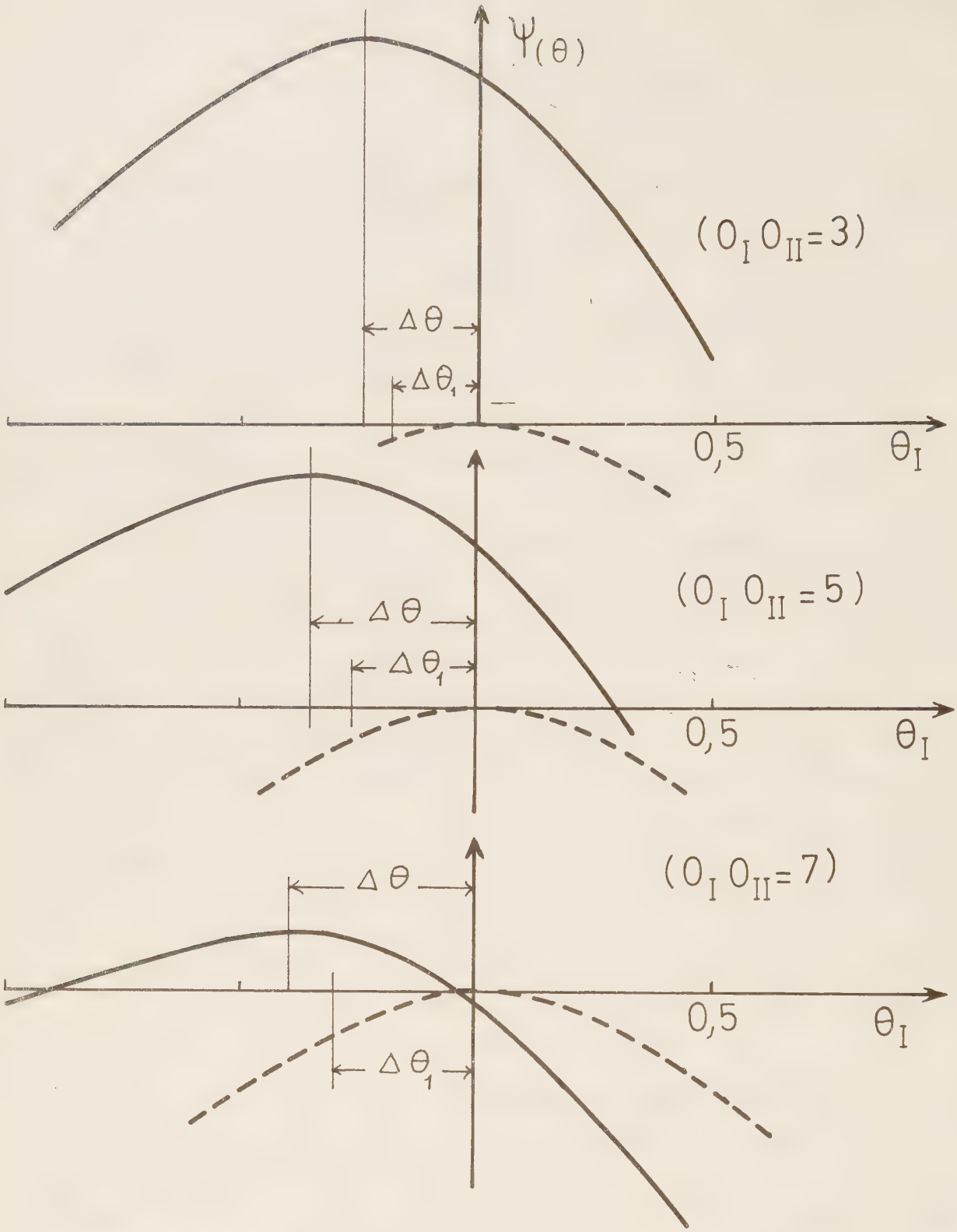


Figure II-11

Dérive du pic $\Delta\theta$ par contraste de phase pour $\varepsilon \frac{\mu a}{2} = 0,5$. L'évaluation de cette dérive par le procédé simplifié $\Delta\theta_1$ n'est plus exacte, mais on trouve que $\Delta\theta/\Delta\theta_1 = 1,3$ pour toutes les courbes. Origine des ordonnées : le sommet du pic (en pointillé) que l'on obtiendrait s'il n'y avait pas de carbone.

Propriétés de l'abaque

1) Pour la réfraction, θ est indépendant de a, en effet

$$\theta = \frac{4\pi}{\lambda \mu a} \times \frac{V}{2E} \times a = \frac{2\pi}{\lambda \mu E} V$$

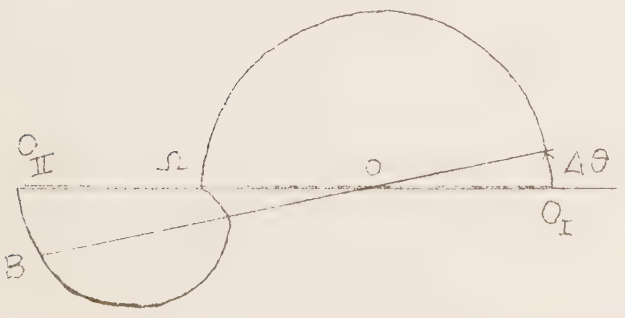
Or dans une expérience donnée c'est a seul qui varie, car seule l'incidence varie si l'on suppose V indépendant de l'incidence (faux en théorie dynamique). θ sera donc déterminé une fois pour toute et B se déplacera sur une spirale à θ constant).

θ est également indépendant de a pour la diffraction concernant le pic I.

2) Comme nous l'avons montré plus haut (II-B-3a) l'abaque permet de reconstituer aisément le profil résultant de l'amplitude des deux taches I et II lorsqu'elles se chevauchent. (Nous donnons fig. II-11 des exemples de telles constructions)

3) Avec quelques approximations valables tant que $\frac{\lambda \mu E}{2} \leqslant 0{,}4$, on peut, sans construire le profil de l'amplitude résultante, déterminer directement $\triangle\theta$.

En effet on observe sur l'abaque II-10 que pour les courbes C_{II} telles que $\frac{\lambda \mu E}{2} < 0{,}4$, l'arc correspondant à un $\triangle\theta$ donné est beaucoup plus petit sur une courbe C_{II} que sur la courbe C_I. On peut donc dire avec une bonne approximation que lorsque l'on parcourt O_I O_{II} (sur la fig. II-7), le point B de l'abaque est pratiquement fixe sur C_{II}, alors que A parcourt C_I. Par conséquent AB sera stationnaire (maximum du pic résultant) lorsque l'on aura trouvé un cercle C centré en B (supposé fixe) tangent au cercle C_I. Ce point de tangence est aligné avec B et O, centre du cercle C_I. On déterminera donc $\triangle\theta$ pour un cas de réfraction caractérisé par la position de B, en lisant cette valeur à l'intersection de C_I avec l'axe B O



Nous avons vérifié en construisant le profil résultant $\Psi(\theta_I)$ que l'on pouvait utiliser le critère ci-dessus même si les approximations initiales ne sont pas très bien justifiées. Il suffit de multiplier ΔV par un coefficient approprié, par exemple sur la courbe $\frac{\varepsilon \mu a}{2} = 0,5$ (fig. II-11) on multiplie ΔV par 1,3, mais il faut remarquer que le profil de la courbe commence à devenir nettement dissymétrique (cas $\theta_{II} = 7.$)

4) Supposons que l'on ait déterminé le $\Delta\theta$ correspondant au glissement du pic : on obtient immédiatement la correction que l'on doit apporter à V :

$$\boxed{\Delta V = \theta_I V_o^i} \qquad (II-14)$$

Cette relation est obtenue en remplaçant μ par $\frac{2\pi V_o^i}{E\lambda}$ dans (II-13)

e) Interprétation qualitative

L'observation de l'abaque seule permet de se rendre compte de la manière dont variera ΔV.

1) Tant que $O_I O_{II}$ correspond à un déphasage φ_{II} de l'ordre de 30°, le décalage du pic restera toujours faible car on a

$$OA \# \frac{OB}{2}$$

2) Traçons à partir de O une tangente à la plus grande courbe C_{II}. Cette tangente fournit la valeur $\Delta\theta$ maximum que l'on peut obtenir dans un cas raisonnable : $\Psi_{II}\ \text{max.} \leq \frac{\Psi_I\ \text{max.}}{2}$
on trouve $\Delta\theta \leq 0,3$
Sachant que V_o^i vaut 1,3 V on trouve que la correction ΔV est ici inférieure à 0,4 V.

3) Lorsque φ_{II} est compris entre 60° et 120° il n'est pas nécessaire de connaitre θ donc $V_I - V_{II}$ avec une grande précision puisque la courbe C_{II}, dans cette région est orientée presque parallèlement à BA.

./.

f) Exemple d'application de la méthode

Etude de la dérive du pic MgO lorsqu'un prisme est recouvert d'une épaisseur de carbone de 50 Å

Valeurs numériques :

$V_o^i = 1,3$ V $\qquad \mathcal{M} = 2,5 \times 10^{-3}$ Å^{-1}

$V_{MgO} - V_c = V_I - V_{II} = \phi$ 7 volts

On évalue d'abord $O_I O_{II} = \Theta_C$ abscisse du point B sur C_{II}

$$\Theta_C = \frac{V_I - V_{II}}{V_o^i} = \frac{7}{1,3} = 5,4$$

Cette valeur va être conservée quelles que soient l'orientation et la forme du prisme (qui définissent a).
Le choix de la courbe C_{II} sera donné par la quantité $\frac{\mathcal{E}\mathcal{M}a}{2}$ qui dépend des conditions expérimentales.

On obtient le tableau des résultats suivants :

a	β min (en degrés) pour A=90°	β min (en degrés) pour A= 135°	$\frac{\mathcal{E}\mathcal{M}a}{2}$	ΔV
5	15°	20°	0,315	0,19
7	8°	10°	0,44	0,32
9	6°	6 °	0,56	0,55V*

* construction point par point.

En première conclusion nous pouvons dire que ce système d'abaque nous a permis d'évaluer très rapidement l'ordre de valeur de la dérive du pic : elle est toujours assez faible.

A partir de $\frac{\mathcal{E}\mathcal{M}a}{2} = 0,5$ il est plus correct d'effectuer la construction complète, car à partir de cette valeur l'hypothèse de la fixité du point B n'est plus exacte lorsque A décrit C_I. Sur la figure II-11 nous avons représenté la position du sommet après construction point par point et la position du sommet obtenue par l'intersection de B O avec C_I : pour toutes les valeurs de Θ c envisagées, l'erreur relative introduite pour la mesure de ΔV est à peu près constante : il

./.

faut multiplier par 1,3 les résultats obtenus par la méthode simplifiée pour atteindre le vrai résultat. Dans tous les cas on ne connait probablement pas $\mathcal{E}$ à mieux que 20%.(Une image de l'arête à fort grossissement et légèrement défocalisée permet d'observer directement l'épaisseur du dépôt).

Notons aussi que sur la figure II-11 le contraste de phase à tendance à affiner le pic.

On peut maintenant se demander ce qui se passe lorsque l'on complique un peu les hypothèses de départ :

- carbone absorbant
- arête du prisme arrondie

Nous avons rejeté en annexe I le type de traitement amélioré qui ne change rien à l'ordre de grandeur des résultats obtenus.

PRINCIPALES NOTATIONS UTILISEES EN IIIème PARTIE

K_o Vecteur d'ondes dans le vide (lieu géométrique de son origine : la surface Σ_o).

g Vecteur réciproque (symbole généralement réservé dans le texte aux diffractions d'ordre 1).

i_{k_g} Vecteurs d'ondes dans le cristal.

V_o, V_g Termes de Fourier du potentiel cristallin

V_1 , $V_2 = V_g$, V_{2g} ...

$\mathcal{V}_i$ Valeurs propres de l'équation de Schrödinger, exprimées en volts (ou potentiels propres), lorsqu'on la réfère au potentiel nul.

$\mathcal{V}_i'$ Mêmes valeurs propres lorsqu'on les réfère au potentiel interne moyen (P.I.M.)

$\mathcal{V}_i'$ Partie imaginaire de la valeur propre.

$\mathcal{M}_i$ Coefficient d'absorption du champ d'ondes i.

$M(\mathcal{V}_i)$ (ou M) Mesure du potentiel propre $\mathcal{V}_i$, c'est un vecteur dont le module, exprimé en $\mathring{A}^{-1}$, est proportionnel à l'angle de réfraction du faisceau direct : (M_o), ou diffracté : (M_g). Ces deux valeurs ne sont généralement pas les mêmes.

$\frac{\Delta M}{M} = \frac{M_g - M_o}{M_o}$: Distorsion relative de la mesure sur le faisceau g.

- III -

MESURE DE Vo ET Vh EN THEORIE DYNAMIQUE PAR REFRACTION DES ELECTRONS

Introduction

Jusqu'à présent, nous avons supposé que les paramètres potentiel interne et coefficient d'absorption ne dépendaient pas de la structure de l'espace réciproque. Or en théorie dynamique de la diffraction électronique on tient compte d'un potentiel tripériodique dans le calcul de l'intensité des faisceaux réfléchis sur les différents plans réticulaires et dans le calcul de l'énergie cinétique des électrons dans le cristal. On est alors amené à introduire plusieurs champs d'ondes pour lesquels les électrons ont des énergies potentielles dont la valeur dépend de l'incidence du faisceau sur le cristal. A chacun de ces champs d'ondes correspondra ce que nous appellerons désormais un "potentiel propre" que l'on mesurera comme on mesurait Vo plus haut.

A noter toutefois que ce potentiel propre est défini à une constante près qui dépend du choix du faisceau Kg sur lequel on se propose d'effectuer les mesures.

Les problèmes qui vont se poser à nous seront donc les suivants :

- Comment la construction de la figure de réfraction proposée chapitre II-A-3 s'adapte-t-elle aux faisceaux diffractés et quel facteur de distorsion est introduit dans ce cas.

./.

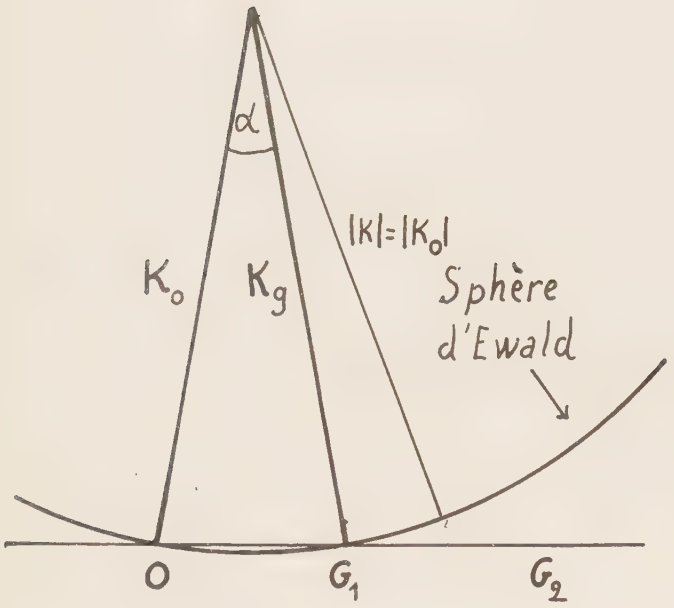


Figure III-1.

La sphère d'Ewald de rayon K passe par l'origine du réseau réciproque O. Tout noeud réciproque G se trouvant sur la sphère d'Ewald définira un rayon K_g dont la direction correspondra à une direction de diffraction.

- Comment varient les potentiels propres des champs d'ondes en fonction de l'incidence (propriétés géométriques de la surface de dispersion), et comment peut-on mesurer les termes Vg à partir des potentiels propres :
- Enfin, comment et dans quelles conditions peut-on passer de la théorie à N faisceaux à la théorie à 2 faisceaux, pour laquelle Kato (1952) a développé une Théorie de Transmission des électrons rapides par les prismes cristallins.

III-A - RAPPELS SUR LA THEORIE DYNAMIQUE

L'approche la plus simple de la diffraction des électrons par les cristaux consiste à admettre que lorsque les électrons se réfléchissent sur des familles de plans réticulaires distants entre eux de d, l'influence du pseudopotentiel du cristal $V(r) = V_o + \Sigma V_g e^{2\pi i \vec{g}.\vec{r}}$ sur leur énergie cinétique e (E+Vo) est négligeable. C'est la théorie cinématique. On définit les conditions géométriques de diffraction par la construction d'Ewald rappelée sur la figure ci-contre fig.III-1. En fait, les noeuds du réseau réciproque ont en général une certaine étendue principalement à cause de la diffraction de Fraunhoffer de sorte que la construction d'Ewald s'exprime de façon vectorielle

$$\vec{K_g} = \vec{K_o} + \vec{g} + \vec{s}$$

où $\vec{s}$ est un petit vecteur représentant la distance de la sphère d'Ewald au centre de la tache réciproque. L'intensité diffractée est d'autant plus faible que s est plus grand.

En théorie dynamique on ne néglige plus l'effet du pseudopotentiel sur l'énergie cinétique des électrons diffractés à l'intérieur du cristal (Bethe (1928), Mac Gillavry (1940), Heindenreich (1949)). Dans cette théorie, il est

./.

possible de calculer l'énergie cinétique des électrons dans le cristal et la répartition des intensités sur les différentes directions de diffraction, par la résolution de l'équation de Schrödinger.

$$\Delta \Psi(r) + \frac{8\pi^2 me}{h^2} (E + V(r)) = 0 \qquad (III-3)$$

En remplaçant $V_{(r)}$ par sa décomposition en séries de Fourier et en admettant que l'on puisse assimiler $\Psi(r)$ à une onde de Bloch que l'on met généralement sous la forme

$$\Psi(r) = \sum_g \Psi_g \; e^{2\pi i \vec{k}_g \cdot \vec{r}}$$

la relation III-3 s'écrit :

$$\sum_g \left[(K^2 - k_g^2) \Psi_g + \Sigma'_h U_{h-g} \Psi_h \right] = 0 \qquad (III-4)$$

avec $U_h = \frac{h^2}{2me} V_h$ m : masse de l'électron d'énergie cinétique eE

pour des raisons de commodité nous poserons $U_h = \frac{V_h}{E\lambda^2}$

où λ est fourni par la relation relativiste.
Notons que les Ug peuvent être complexes ce cas se produit pour les cristaux non centro-symétriques et lorsque l'on considère l'absorption (Molière (1939), Yoshioka (1957))
Σ' : somme éliminant le cas où g = h, K vecteur d'onde incident. Il correspond à une énergie cinétique eE.
k_o, k_g ($=k_o + g$), vecteurs d'onde transmis et diffractés à l'intérieur du cristal.

Si l'on ordonne des termes de cette équation selon les Ψ_g l'équation de Schrödinger prend la forme matricielle suivante :

$$\begin{pmatrix} (K^2-k_o^2) & U_{g_1} & U_{g_2} & \cdots & U_{g_n} \\ U_{-g_1} & (K^2-k_{g_1}^2) & \cdots & & U_{g_n-g_1} \\ \vdots & & \ddots & & \vdots \\ U_{-g_n} & & \cdots & & (K^2-k_{g_n}^2) \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} \Psi_g \\ \Psi_{g_1} \\ \vdots \\ \Psi_{g_n} \end{pmatrix} = 0$$

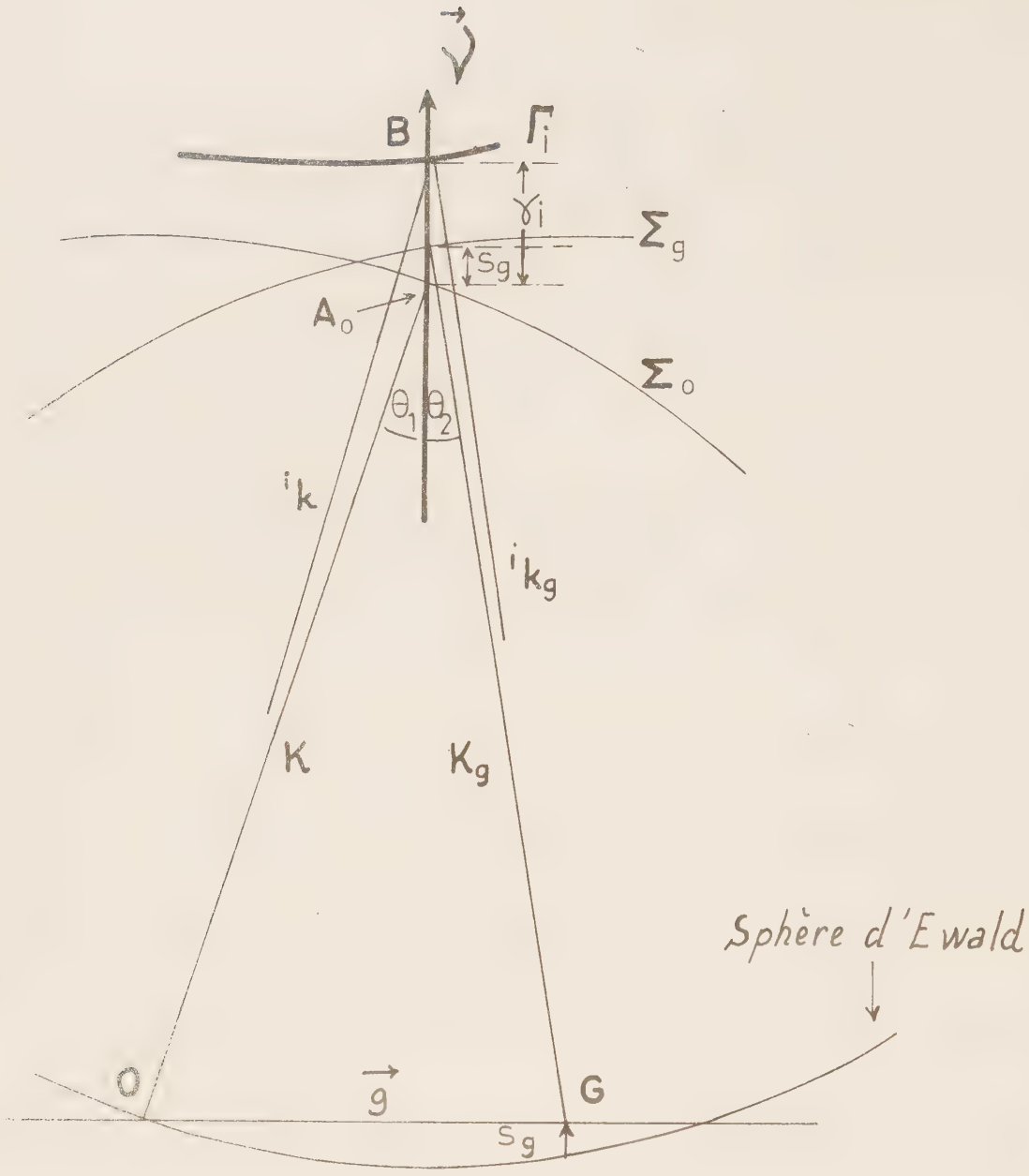


Figure III-2

Figure de dispersion

grâce à cette équation on calcule les différentes valeurs de $i\vec{k}_g$ puis, en tenant compte des conditions aux limites à la surface d'entrée du cristal (conservation des composantes tangentielles de $i\vec{k}_g$) on évalue la répartition des ondes sur les différentes directions de réflexion (voir annexe 4).

2 - Résolution de l'équation de Shrödinger

Dans le cas le plus général, la résolution de l'équation de Schrödinger fait appel au calcul matriciel introduit en théorie Dynamique par Sturkey (1957) Fujimoto (1959), Niehrs (1959). Nous reprenons ici la méthode de Howie-Whelan (1961).

Adaptons la construction d'Ewald à la théorie dynamique en vue de résoudre l'équation III-4. Imaginons que l'orientation de Ko puisse être modifiée. L'origine A de ce vecteur décrira une sphère Σ_o centrée en O. Fixons nous un point A_o de cette sphère et construisons la sphère d'Ewald correspondante fig.III-2 : nous pourrons exprimer les termes diagonaux de la matrice en fonction des éléments de cette figure où Σ_o est le lieu géométrique des Ko avant diffraction, Σ_g le lieu géométrique de l'origine des K_g à la sortie du cristal, Γ_i est l'une des surfaces lieu géométrique des ondes transmises $i\vec{k}_o$ et réfléchies $i\vec{k}_g$ à l'intérieur du cristal. $\vec{\nu}$, la normale à la surface d'entrée du cristal relie entre elles les origines de tous les K. (conditions aux limites).

Exprimons à partir de cette figure les termes diagonaux de la matrice III-4

$$K_o^2 - {}^i k_o^2 = K_o^2 - (K_o + \gamma_i \cos\theta_1)^2$$

$$K_o^2 - {}^i k_g^2 = K_o^2 - (K_o - s_g \cos\theta_2 + \gamma_i \cdot \cos\theta_2)^2$$

./.

En remarquant que $\gamma \ll K$ et que θ est de l'ordre de quelques degrés, on obtient

$$\left.\begin{aligned} K_0^2 - {}^i k_0^2 &= -2 K_0 \gamma_i \\ K_0^2 - {}^i k_g^2 &= 2 K_0 (s_g - \gamma_i) \end{aligned}\right\} \quad (III-5)$$

et l'équation III-4 peut se mettre sous la forme :

$$(A - 2K\gamma_i I) \times C_i = 0$$

ou bien, si l'on pose $u_i = 2 K_0 \gamma_i$ .... quantité que nous avons appelé potentiel propre

$$(A - u_i I) \times C_i = 0 \qquad (III-4\ bis)$$

équation aux valeurs propres où A est la matrice de III-4 et où les termes diagonaux ont pour expression $2 K_0 s_g$
I est la matrice unité. u_i est la valeur propre recherchée (notre potentiel propre) et Ci le vecteur propre correspondant à la valeur propre u_i . Si l'on fait intervenir n directions de réflexion, la résolution de l'équation III-4 bis nous donnera n valeurs propres u_i , qui correspondront à n champs d'ondes dans le cristal. Les vecteurs propres normalisés représenteront la répartition de l'amplitude des ondes i sur chacune des n directions de réflexion g.

La valeur des u_i dépend beaucoup de l'incidence α dont les s_g sont fonction. Le calcul des $u_i(\alpha)$ donc des $\gamma_i(\alpha)$ permet de déterminer le lieu géométrique de l'origine des vecteurs d'onde $-{}^i k_g$ dans le cristal : c'est la surface de dispersion dont on a représenté une nappe Γ_i sur la figure III-2.

Notons que u_i peut être complexe. La partie imaginaire u_i' est reliée au coefficient d'absorption du champ d'ondes i par l'expression

$$\mu_i = \mu_0 + 2\pi\lambda u_i'$$

./.

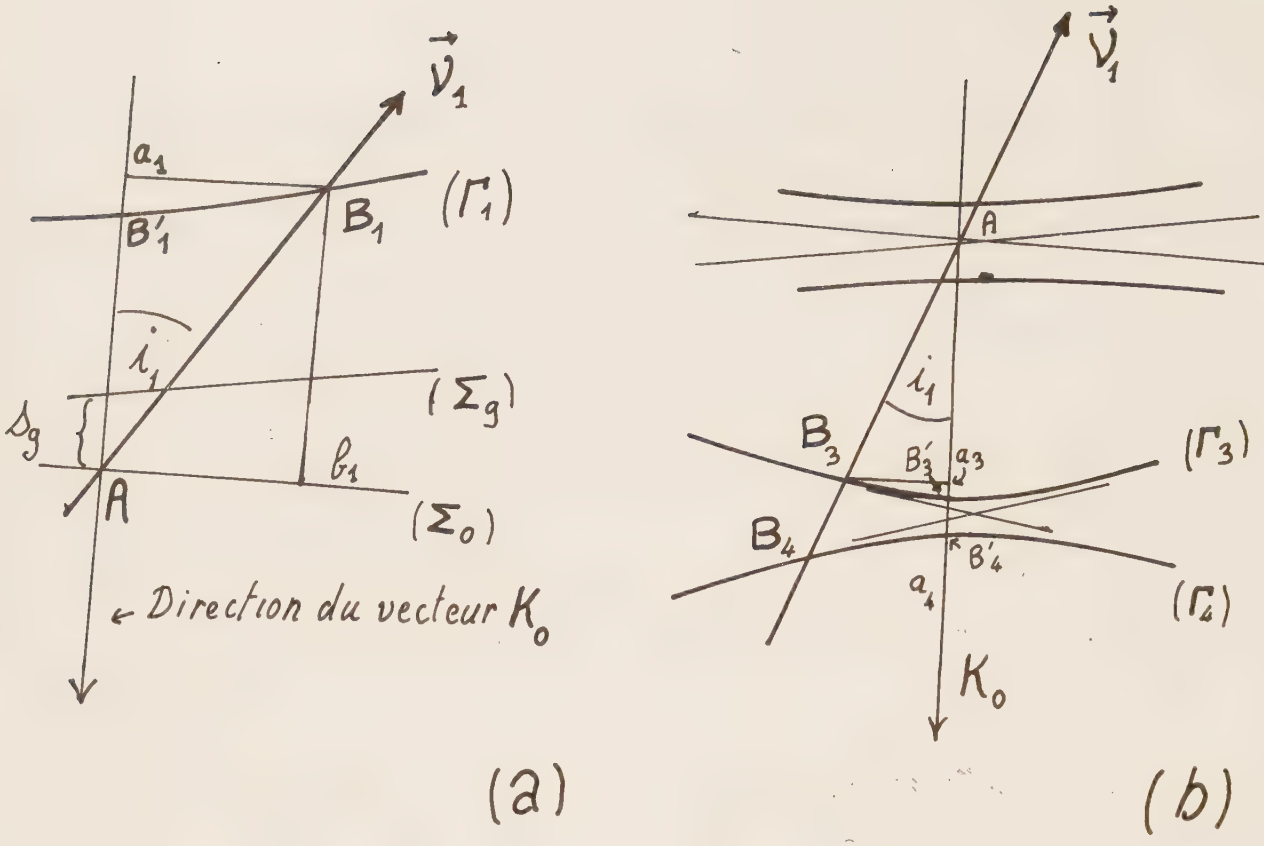


Figure III-2 bis

Comparaison des valeurs propres obtenues en incidence normale et en incidence quelconque.

- $AB_1 \cos i_1 = Aa_1$: longueur proportionnelle à la valeur propre dans le cas de l'incidence quelconque. Fig (a)
- AB'_1 : Longueur proportionnelle à la valeur propre dans le cas de l'incidence normale et calculée à partir de la formule III-4

On voit en (b) que si i_1 n'est pas trop grand (typ i_1 de l'ordre de quelques unités) les valeurs propres Aa_1 et AB'_1 sont égales pour les 2 champs d'ondes les plus intenses (1) et (2). Ce n'est plus vrai pour les champs d'ondes (3) et (4)

μ_o étant le coefficient d'absorption moyen du cristal.

Remarque :

Dans ce qui suit nous nous proposons de mesurer les U_i par réfraction des électrons dans les prismes. L'incidence du faisceau sur la face d'entrée n'a plus aucune raison d'être normale, en outre on ne peut plus admettre l'approximation $\cos\theta_1 \# 1$ (voir fig.III-2). Néanmoins l'expression des termes diagonaux de l'expression III-5 à laquelle conduisait cette approximation est encore valable. Il suffit en effet de remarquer que l'angle de Bragg est assez petit devant i_1 pour que l'on puisse écrire : $\cos i_1 \# \cos\theta_1 \# \cos\theta_2$. Les termes diagonaux s'écrivent alors :

$$K_o^2 - K_g^2 = 2K_o \times \cos i_1 \times (s_g - \gamma_i)$$

où s_g et γ_i sont portés par la direction $\vec{\nu}_1$, $s_g \cos i_1$ représentera donc la distance du point G à la sphère d'Ewald parallèlement à la direction du faisceau incident, et $\gamma_i \cos i_1$ la distance, selon la même direction, du point d'onde B à la sphère Σ_o. La figure III-2 bis reprend les surfaces de dispersions de la figure III-2 lorsque l'incidence est quelconque. Elle montre que lorsque l'on est proche des conditions de Laüe, on peut confondre γ_i (incidence normale) avec $\gamma_i \cos i_1$ (incidence quelconque) pour les champs d'ondes les plus intenses qui seuls nous intéressent.

On peut donc garder pour termes diagonaux les expressions III-5 à condition de définir γ comme la distance du point d'incidence A à la surface de dispersion Γ selon la direction Ko, sg sera défini selon la même direction.

Les valeurs maximums de i_1 pour lesquelles ces approximations sont valables sont calculées en II-C1 elles sont telles que $\mathrm{tg}\, i_1$ peut atteindre quelques unités.

./.

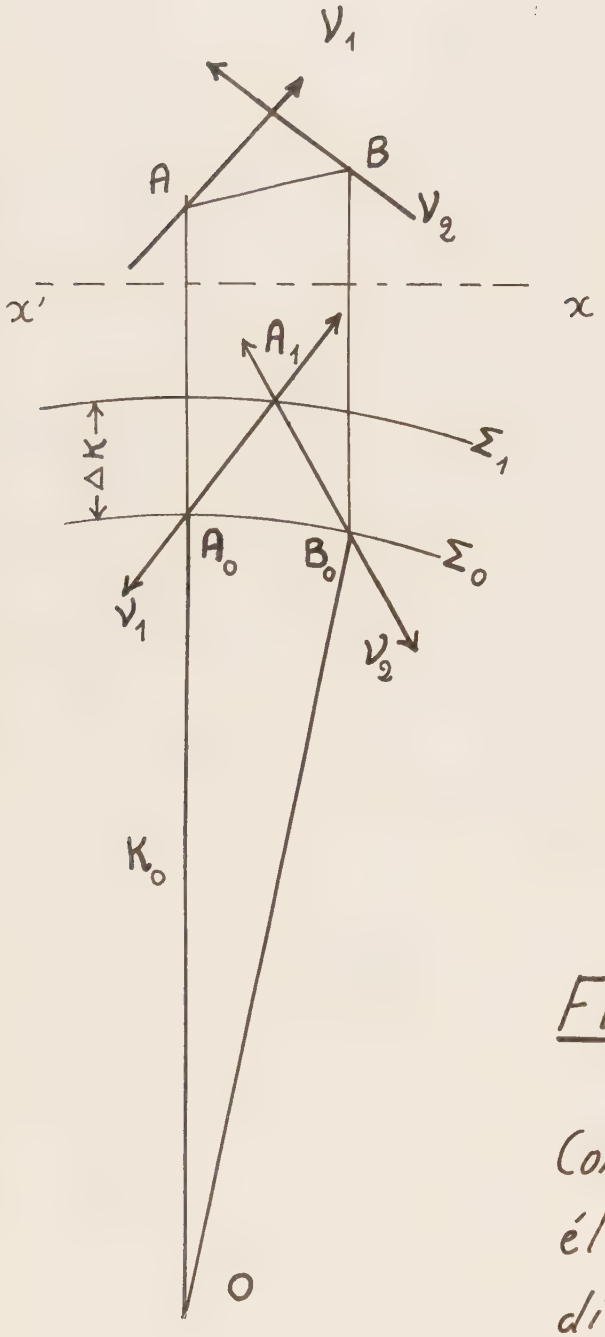


Figure III - 3

Construction de la réfraction des électrons par la méthode des conditions aux limites

III-B - REFRACTION DES ELECTRONS PROVOQUEE PAR L'EXISTENCE DES POTENTIELS PROPRES

1) Réfraction du faisceau direct

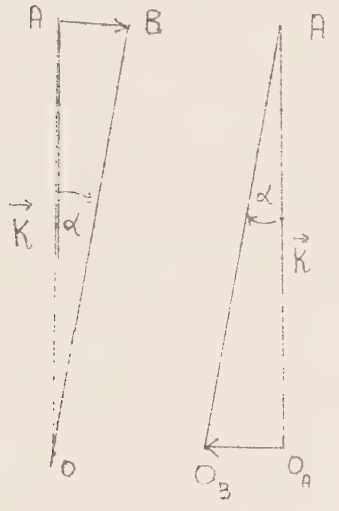
Dans un premier temps il est bon de repenser la construction de la figure de réfraction (II-2) et d'adapter ses propriétés à l'étude de la surface de dispersion, car cette figure faisant directement intervenir les normales $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$ aux faces du prismes est particulièrement bien adaptée aux problèmes de conditions aux limites.

Reprenons donc le cas du potentiel interne moyen(PIM) et raisonnons dès maintenant à l'aide des surfaces de dispersions. On obtient le faisceau réfracté par la méthode des conditions aux limites (v.figure III-3) qui est la suivante. On maintient fixe l'extrémité du vecteur K et c'est son origine que l'on déplace. La construction III-3 n'implique pas que $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$ soient dans le plan de la figure. Il suffit alors d'effectuer un rabattement pour connaître l'orientation dans l'espace de $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$

Le principe de la construction est le suivant. A partir de Ao, origine du vecteur d'onde incident, on porte $\vec{\nu}_1$ (ou sa projection sur le plan du dessin). L'origine du vecteur d'onde réfracté dans le cristal est fournie par l'intersection de $\vec{\nu}_1$ avec la sphère Σ_1 , lieu géométrique de l'origine du vecteur K dans le cristal. En A_1 on porte $\vec{\nu}_2$ et l'intersection de $\vec{\nu}_2$ avec Σ_o donne l'origine du vecteur Ko définissant la direction du faisceau réfracté à la sortie du prisme.

./.

Propriétés de la figure



En reprenant pour $\vec{\alpha}$ la définition donnée en II-A-2 :

$\frac{|\alpha|}{\vec{\alpha}}$: module de l'angle de réfraction parallèle à $\vec{\delta}$: déviation du faisceau par réfraction sur l'écran, on a, dans le plan rabattu de la figure III-3

$$\overrightarrow{AB} = -|K|\,\vec{\alpha} = -\frac{K}{L}\,\vec{\delta}$$

(le signe - est dû au fait que K tourne autour de son extrémité schéma ci-contre).

L'intérêt de figurer la réfraction à partir de l'extrémité du vecteur K apparaîtra au prochain chapitre, car en réservant à l'extrémité des vecteurs les déviations par diffraction et aux origines les déviations par réfractions, on sépare simplement deux phénomènes qu'il serait malaisé de représenter en même temps, compte tenu de l'énorme différence d'ordre de grandeur des éléments de la figure III-2.

Nous appellerons désormais AB : mesure de V, Cette mesure pouvant, en principe, aussi bien s'effectuer sur la direction incidente que sur la direction diffractée. Rappelons que AB est relié à V par l'expression :

$$\frac{\overrightarrow{AB}}{K} = \frac{V}{2E}\left(\vec{n}_1 \operatorname{tg} i_1 + \vec{n}_2 \operatorname{tg} i_2\right)$$

./.

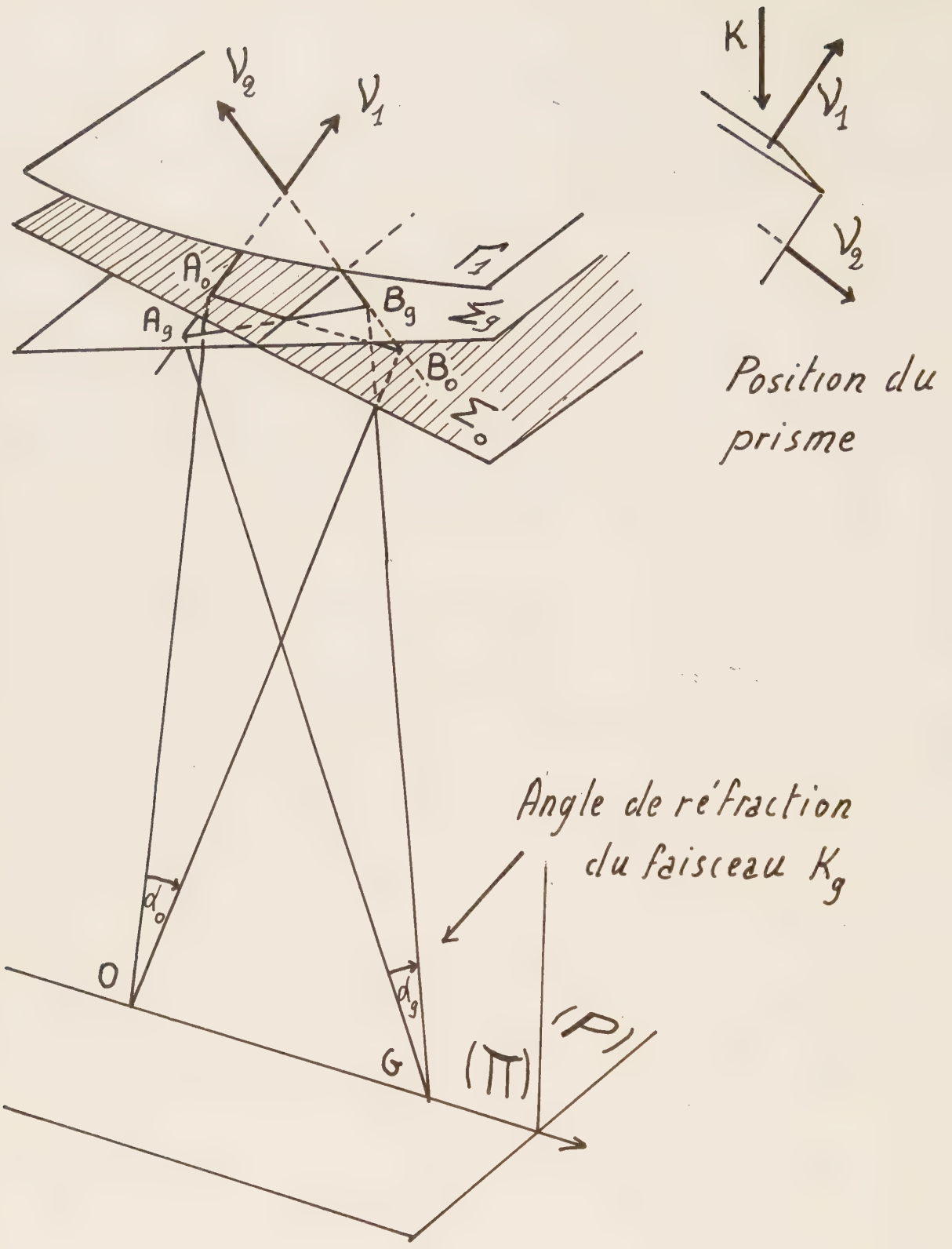
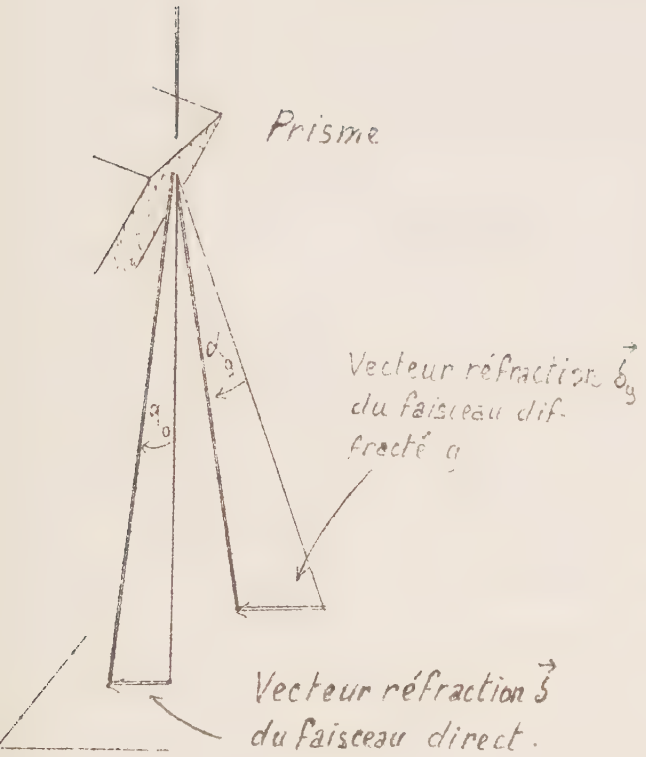


Figure III-4

Réfraction des faisceaux K_0 et K_g dans un prisme d'orientation quelconque.

III-B-2 - REFRACTION DES FAISCEAUX DIRECTS ET DIFFRACTES PAR LES PSEUDOPOTENTIELS PROPRES



Supposons maintenant que le prisme diffracte les électrons dans n directions g. Il s'agit d'étudier comment vont se réfracter les différents faisceaux compte tenu de la valeur des potentiels propres et de la direction de diffraction par rapport à l'orientation du prisme. A une valeur propre correspondra-t-il un même angle de réfraction, donc une même mesure, pour la tache O et pour les taches G ? Construisons donc sur la figure de dispersion III-2 la mesure d'un potentiel propre U_i en adaptant la méthode des conditions aux limites utilisée pour la mesure de Vo fig.III-3. Cette construction est représentée en perspective figure III-4. Le point d'onde C définit l'origine d'un des vecteurs d'onde dans le cristal. Les intersections de $\vec{V}_1$ et $\vec{V}_2$ avec les surfaces Σ_o et Σ_g définiront les vecteurs mesures Ao Bo et $A_g B_g$ qui sont proportionnels aux vecteurs réfractions $\vec{\delta}_o$ et $\vec{\delta}_g$ des taches O et g du diagramme. On montrera dans l'annexe II au moyen d'une construction géométrique exacte qu'en général $A_o B_o$ et $A_g B_g$ ne sont pas égaux, et l'on calculera la distorsion ainsi mise en évidence.

Il faut d'abord remarquer que les schémas habituellement dessinés rendent mal compte des véritables ordres de grandeur des éléments qu'ils représentent. Dans le cas de la figure III-3 par exemple, supposons que l'on ait

$V_o = 20\,V$ et $E = 100\,KV$ on obtient $\frac{\Delta K}{K} = 10^{-4}$

Si donc ΔK est représenté par 2cm, K devrait avoir une longueur de 200 mètres.

En ce qui concerne III-2 où intervient une réflexion g, une réflexion sur des plans distants de 2 Å serait représentée par un vecteur OG de 7 m. En outre, les angles de diffraction sont de l'ordre de quelques degrés.

Pour résoudre le problème posé en tête de ce chapitre nous nous contenterons de représenter AB, mesure de $\mathcal{U}_i$ définie plus haut et proportionnelle à

$$\alpha_r = \frac{AB}{K}$$

Seule la partie supérieure de la figure III-2 dont le principe est fourni par la figure II-2 va donc nous intéresser désormais car les éléments qu'elle contient suffisent pour déterminer AB. Voyons quelques proprités de cette figure :

Les surfaces Σ_g et Γ_i sont de révolution autour de l'axe OG qui est contenu dans le plan (π) de la figure. Etant données les très faibles courbures de ces surfaces, on admettra que dans le domaine où $\vec{V}_1$ et V_2 coupent ces surfaces, (figure III-4), les Σ_g , ici lieu géométrique des vecteurs d'ondes transmis et diffractés dans le vide, seront des plans normaux au plan de la figure et les surfaces Γ_i seront générées par une normale a π décrivant la trace des Γ_i sur la figure. Les intersections de $\vec{V}_1$ et $\vec{V}_2$ avec les surfaces Σ et Γ auront donc les propriétés suivantes : la projection sur le plan π , de l'intersection de la nappe de dispersion avec V_1 ou V_2 est confondue avec l'intersection de la trace de la nappe de dispersion avec les projections de V_1 ou V_2 sur le plan π . Ainsi l'on pourra décrire complètement l'aspect géométrique de la réfraction en se plaçant dans le plan (π). Un rabattement de la figure dans un plan parallèle au diagramme de diffraction fournira la longueur et la direction des différents vecteurs "mesure" AB comme on l'a vu figure III-3 dans le cas du potentiel interne moyen.

Pour fixer les idées, rappelons que l'on passe du vecteur réfraction δ_g au vecteur mesure Mg par la relation

$$\vec{\delta}_g = -\frac{L}{K} M_g \qquad (III-6)$$

(sur la figure III-5 on a fait $\frac{L}{K} = 1$)

III-B-3 - DISTORSION DE LA MESURE D'UNE VALEUR PROPRE PRISE SUR UNE DIRECTION g

C'est seulement après avoir défini la valeur propre zéro que l'on peut donner une signification physique de cette grandeur. Transposée sous forme géométrique, cela revient à définir les origines des mesures sur les schémas donnant la surface de dispersion. En effet la valeur propre est liée aux termes diagonaux de la matrice A, or ces termes peuvent être définis à une constante additive près. Un peu plus haut, par exemple nous avons choisi pour termes diagonaux $K^2 - k_g^2$ où K est le vecteur d'onde hors cristal, mais la plupart des auteurs ont coutume d'attribuer au vecteur K l'énergie e(E + Vo). Cela veut dire que l'on étudie le phénomène après réfraction du faisceau incident par le P.I.M. Cette manière de voir à l'avantage de permettre une comparaison plus directe avec la théorie à deux faisceaux et d'introduire le paramètre Sg de façon plus rationnelle au niveau de la surface de dispersion, surtout lorsque la face d'entrée du prisme est assez oblique par rapport au faisceau incident.
(voir remarque de III-A-2)

Cette nouvelle valeur $\mathcal{U}_i^1$ trouvée vaudra $\mathcal{U}_i - U_o$ valeur donc plus faible que précédemment, puisque l'on prend pour origine la mesure du potentiel interne moyen.

Autre propriété : pour un même champ d'ondes les valeurs propres $\mathcal{U}_{i,g}$ sont définies au terme additif $2k\delta_g$ près comme l'indique le schéma :

./.

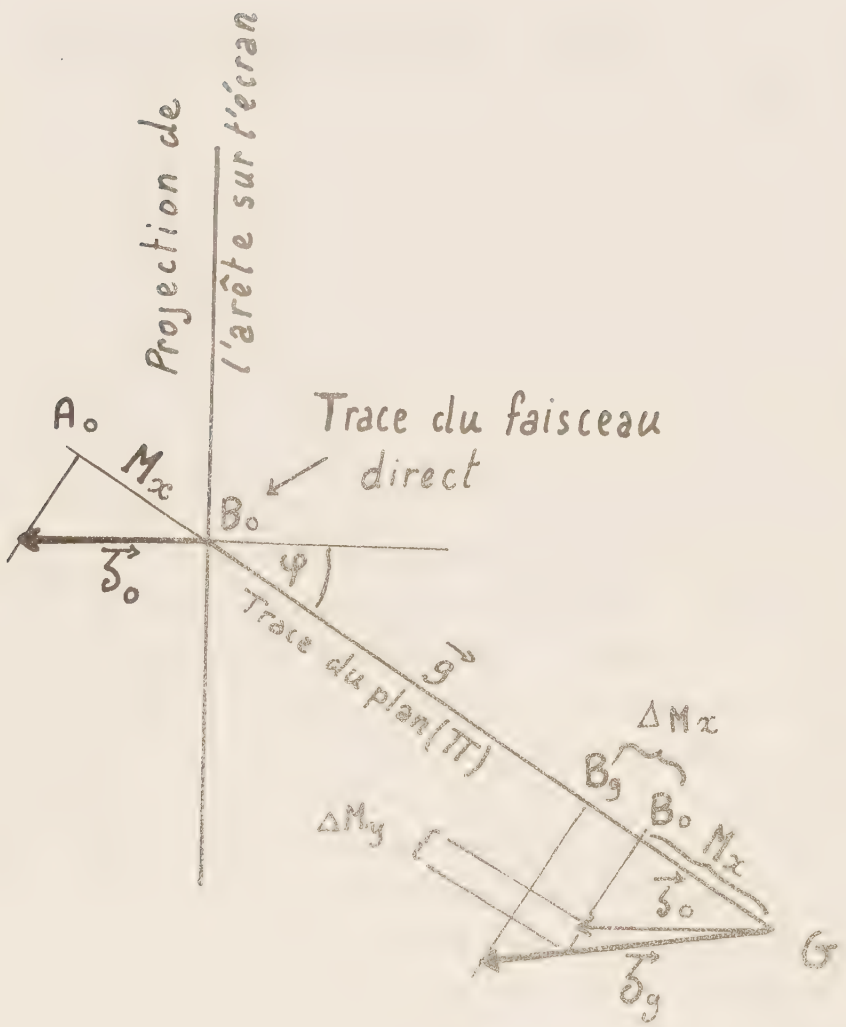
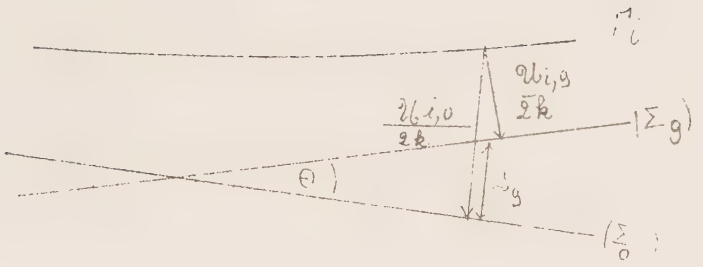


Figure III-5°

Réfraction $\vec{S}$ sur les diagrammes de diffraction.



Nous allons donc étudier la distorsion de la mesure des $\mathcal{U}_i$ en dissociant celle apportée par la mesure de $\mathcal{U}_o$ de celle apportée pour la mesure de $\mathcal{U}_i'$.

Les expressions trouvées pour la distorsion ne seront pas directement utilisées puisque notre méthode n'exige pas la mesure des $\mathcal{U}_i$ à partir des taches diffractées. Néanmoins, leur examen permettra de savoir quelles taches il est bon d'utiliser pour faire un étalonnage correct de la longueur de diffraction L du dispositif, et de comprendre pourquoi, d'une tache de diffraction à l'autre, il n'est pas toujours aisé d'établir une correspondance entre les taches réfractées et les nappes de dispersion.

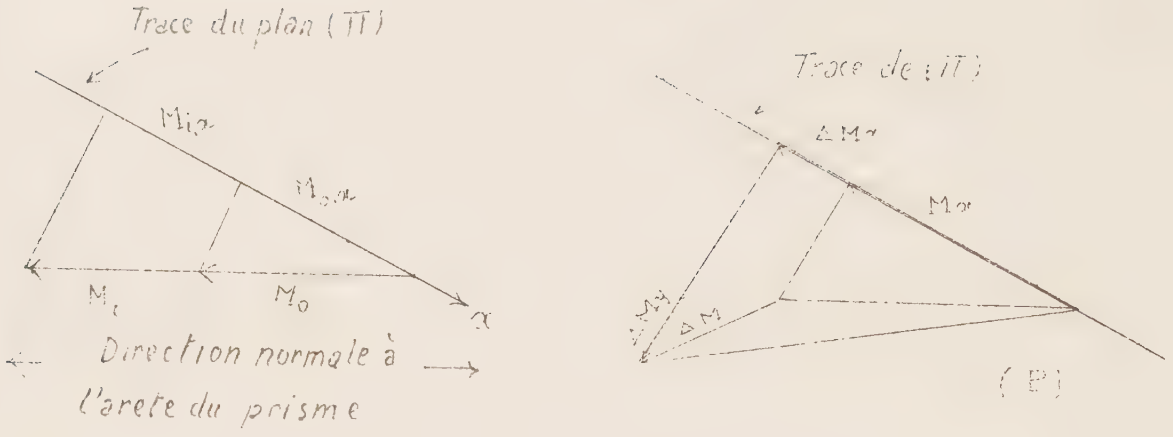
On verra enfin, que si l'on peut indicer les nappes de dispersion à partir des faisceaux réfractés il est possible, dans les résultats qui suivent de trouver une méthode supplémentaire pour évaluer s lorsque l'on n'a pas de lignes de Kikuchi visibles sur le diagramme.

a) <u>Distorsion sur la mesure M de $\mathcal{U}_o$</u>

Reprenons agrandie la portion de la figure III-5 représentant la tache réfractée. On y montre, sans tenir compte de la distorsion la masure de la valeur propre qui comprend la mesure de $\mathcal{U}_o$ et la mesure de $\mathcal{U}_i$ définies plus haut.

Chacune de ces mesures, lorsqu'elles sont effectuées sur une tache G peuvent être affectées d'une distorsion ΔM qui a pour composante ΔM_x contenue dans le plan Π (donc parallèle à OG et ΔM_y dans la direction normale à Ox dans P.

./.



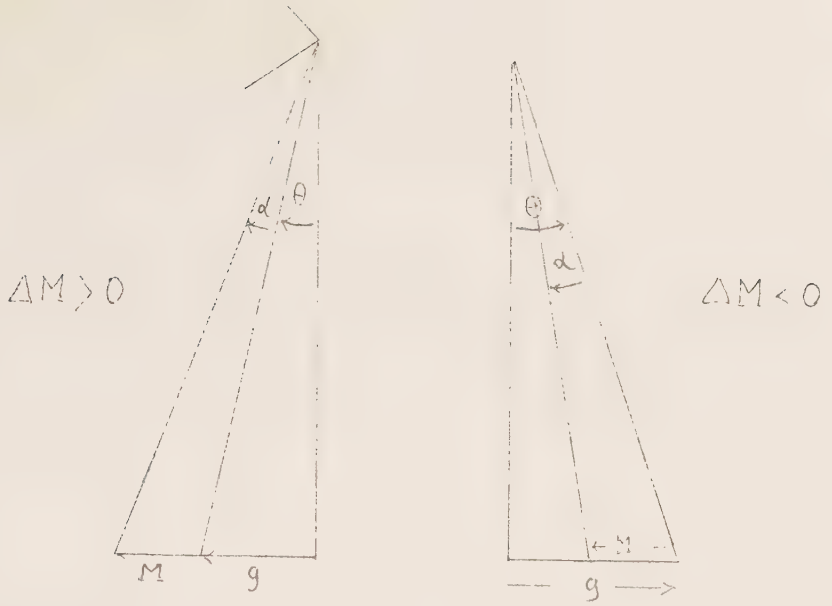
Le détail du calcul de ΔM_x et ΔM_y est fourni en A-II, nous retenons ici les résultats importants de cette étude : En général ΔM_y n'est appréciable que lorsque l'arête N du prisme est très inclinée par rapport au plan normal au faisceau, en effet cette distorsion relative est dans tous les cas de l'ordre de $\Delta M_y / M = \theta \operatorname{tg} \omega$: θ angle de Bragg, de l'ordre de quelque 10^{-2} radian, ω , défini figure II-2 est l'angle entre l'arête et le plan d'onde incident. Nous donnons plus loin l'expression de la distorsion longitudinale qui est bien plus importante. Lorsque ΔM_y est négligeable on peut écrire $\frac{\Delta M_x}{M_x} = \frac{\Delta M}{M}$

Les constructions graphiques de l'annexe nous conduisent à adopter la convention de signe suivante :

Les expressions (III-7 et 8) données plus loin devront être affectées :

- du signe + si les angles de diffraction et de réfraction sont orientés dans le même sens.
- du signe - si ces angles sont orientés en sens inverse (voir schéma).

./.



Distorsion sur la mesure de Vo

Compte tenu du fait que l'arête du prisme n'est pas trop inclinée $\vec{n}_1 \, tg\, i_1$ et $\vec{n}_2 \, tg\, i_2$ ne font pas entre eux un angle notable et la relation :

$$\frac{\Delta M_x}{M_x} = \theta (tg\, J_1 - tg\, J_2)$$

(J_1, J_2 : angle entre le faisceau incident et la projection de la normale $\vec{V}_1$ et $\vec{V}_2$ sur Π)
peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\Delta M_x}{M_x} \# \theta (tg\, i_1 - tg\, i_2) \cos \varphi$$

φ est le complément de l'angle entre OG et la projection de l'arête sur l'écran (v.fig. III-5)

Cette distorsion, on le voit, s'annule lorsque $\varphi = \frac{\pi}{2}$ c'est à dire lorsque OG est parallèle à l'arête, et aussi lorsque $i_1 = i_2$

Remarque :

Faisons réfracter des électrons dans un cube de MgO, par exemple. Les électrons vont se réfracter dans les deux prismes opposés I et II (v.schéma) et : "Mesure (Vo)" = $\frac{M_I + M_{II}}{2}$

./.

Effectuons la mesure sur une tache G. Les erreurs ne se compenseront pas car si la rel.III-7 change de signe, on doit aussi permuter i_1 et i_2 et $\frac{\Delta M}{M}$ reste inchangé.

b) <u>Distorsion sur la mesure d'une valeur propre $\mathcal{V}'_i$</u>

On a $\frac{\Delta M}{M} = \frac{s}{\gamma} + \theta \, tg \, i_2$

Ce qui peut s'écrire (pour i et α de même signe

$$\frac{\Delta M}{M} = \frac{s}{\gamma} + \theta \, tg \, i_2 \cos\varphi \qquad III\text{-}8$$

lorsque $\varphi = \frac{\pi}{2}$

il reste $\frac{\Delta M}{M} = \frac{s}{\gamma}$ ou encore $\Delta M = 2k\,s(tgi_1 + tgi_2)$

ΔM est alors la mesure de s à 2 k près. On voit que si on a la possibilité de mesurer ΔM par exemple lorsque l'objet diffractant comporte deux prismes non parallèles, on

./.

peut atteindre S_g comme on pu le faire, avec des formules différentes de celles-ci Molière et Niehrs (1955), Miyake (1963), en considérant les intersections des lignes de "multiplets" qui constituent les taches diffractées dans les fumées de Mg O. Néanmoins, la précision est moins bonne que par le procédé classique.

PREMIERE CONCLUSION :

La mesure d'une valeur propre $\mathcal{U}_i = \mathcal{U}_0 + \mathcal{U}_i'$ sera en général difficile pour toute tache (hkl) puisque l'incidence du faisceau sur le prisme intervient dans cette distorsion, et puisque dans la plupart des cas la position du faisceau g non réfracté n'est pas indiquée sur l'écran. Ainsi les mesures des valeurs propres ne pourront commodément s'effectuer que sur le faisceau direct, là il n'y a pas de distorsion. En outre, il ne sera possible d'étalonner la chambre de diffraction qu'en utilisant des taches telles que OG soit parallèle à l'arête du prisme. La direction de réfraction est alors normale à OG.

III-B-4 - MESURE D'UNE DIFFERENCE DE VALEURS PROPRES

Lorsque la réflexion g est très proche des conditions de Läue, deux champs d'ondes i et j sont très intenses sur les faisceaux O et G et la mesure de la différence $\mathcal{U}_{i,j}$ des valeurs propres correspondantes permet d'atteindre le pseudopotentiel U_g par la relation

$$U_g = \frac{\mathcal{U}_{i,j}}{2} + \varepsilon$$

(voir III-D)

ε : terme correctif dû au fait que l'on ne peut négliger l'influence de réflexions moins intenses pour la détermination des valeurs propres $\mathcal{U}_i$ et $\mathcal{U}_j$. Nous verrons au chapitre

./.

III D comment évaluer ce dernier terme. Bien entendu on passe, comme précédemment de la distance δ des taches réfractées i et j à la mesure de $\eta_{i,j}$: M ($\eta_{i,j}$) par la relation :

$$\delta = - \frac{L}{K} \times M(\eta_{i,j})$$

Contrairement au cas précédent, il est très intéressant de mesurer une différence de valeurs propres $\eta_{i,j}$ sur une tache G, en effet, les conditions de mesures sont aussi favorables que sur le faisceau direct, car les intensités des deux taches concernées sont du même ordre de valeur, même lorsque l'on s'écarte un peu des conditions de Läue pour la réflexion G ; en outre, sur la tache diffractée on n'a pas de problèmes avec l'éventuel phénomène de contraste de phase décrit en II B 2.

L'annexe II fournit la construction de la mesure de $\eta_{j,i}$ M ($\eta_{i,j}$) et permet d'exprimer la distorsion.

$$\frac{\Delta M}{M(\eta_{i,j})} = \theta \, tg \, i_2$$

qui peut s'écrire lorsque l'arête n'est pas trop inclinée.

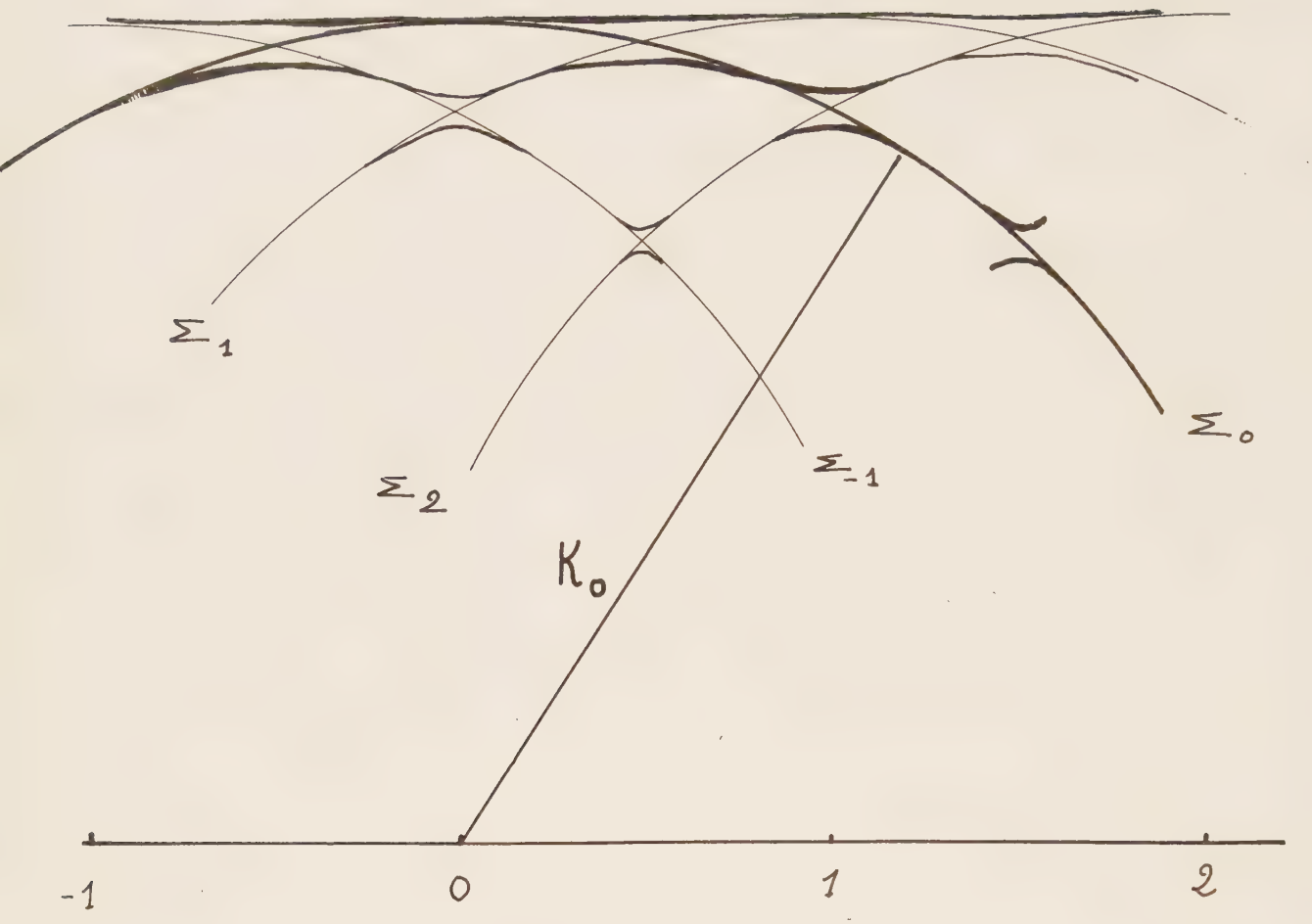
$$\frac{\Delta M}{M} \quad \theta \, tg \, i_2 \, \cos\varphi \qquad (III-9)$$

Remarque :

Supposons que l'arête du prisme soit parallèle à la direction [001] . Pour toute réflexion (hkl) on aura même valeur de $\theta \times \cos\varphi$ si 1 seul varie, donc on aura même distorsion pour les taches se trouvant sur des files réciproques parallèles à l'arête.

Evaluons la distorsion dans le cas des réflexions (220) et (240) pour des mailles CFC de l'ordre de 4 Å et pour des longueurs d'onde λ de 0,04 Å.

./.



Surface de dispersion dans le cas systématique

pour une réflexion (220) : $tg\ i_2 = 1$, $\theta = \frac{\lambda}{d} \simeq 3.10^{-4}$ Rad.
on trouve : $\frac{\Delta M}{M} = 3\ \%$
pour une réflexion (420) ($tg\ i_2 = 2$)
on trouve $\frac{\Delta M}{M} = 9\ \%$
La distorsion devient vite très importante.
On aura donc toujours avantage à effectuer les mesures sur le faisceau direct ou sur les files parallèles à l'arête, lorsque l'on approche de l'incidence rasante sur la face 2 du prisme.

III-C - COMMENT OBTENIR V_g A PARTIR DE LA MESURE DES VALEURS PROPRES ET DE LA DETERMINATION DE LA POSITION DU VECTEUR D'ONDE

Pour préciser la nature de ce problème considérons la surface de dispersion dans le cas des interactions systématiques. La coupe de cette surface par le plan (Π) défini par les vecteurs OG et Ko est donnée par la figure ci-contre : Ce sont des courbes restant voisines de cercles Σ_o de rayons Ko centrés sur les noeuds réciproques de la file systématique. Si l'on fait varier l'incidence du faisceau de telle manière que le point d'onde reste dans le plan Π . (afin d'éviter des interactions accidentelles fortes), le point A, origine du vecteur Ko va décrire le cercle Σ_o . Pour les incidences représentées par chacun de ces points A, les valeurs propres de l'équation de Schrödinger seront fournies par l'interaction de la normale avec la nappe de dispersion. Ces valeurs propres nous sont données par un calcul dont le principe est fourni en III-A. Or ce calcul montre que le flux d'électrons des champs d'ondes correspondant aux nappes de dispersion marquées en traits gras contient toujours presque toute l'intensité du faisceau émergeant; au moins 85%, et lorsque le point A approche d'une zone

./.

de Brillouin, pratiquement toute l'intensité correspondant aux deux champs d'ondes intenses se retrouve sur la tache directe et diffractée (voir IVème partie) : en ce qui concerne l'intensité, la théorie à deux faisceaux est donc très valable.

En conclusion, pour un diagramme de diffraction où seule la réflexion G est intense on observera par réfraction deux valeurs propres correspondant toujours aux nappes les plus proches de Σ_0 et Σ_g . Ce sont les nappes que l'on considère habituellement en Théorie Dynamique à deux faisceau : $\gamma_1 - \gamma_2$ différence des potentiels propres sera donc de l'ordre de 2 Vg.

Toutefois pour faire des mesures précises on va tenir compte des interactions systématiques qui ont une grande influence sur la détermination des valeurs propres. On procèdera donc comme suit :

- on mesurera $\gamma_1 - \gamma_2$ à partir du doublet réfracté comme on l'a indiqué plus haut.
- on calculera $\gamma_1 - \gamma_2$ en théorie à n faisceaux en se servant :
  1) des valeurs de V_g calculées à partir du facteur de diffusion des RX ou relevées dans les tables de Radi (1970).
  2) de l'orientation du faisceau à partir du diagramme de Kikuchi.

Si l'on suppose que $\gamma_1 - \gamma_2$ est de l'ordre de grandeur de 2 Vg on peut obtenir la véritable valeur de Vg en posant

$$(\gamma_1 - \gamma_2)_{(exp.)} - 2V_g = (\gamma_1 - \gamma_2)_{(calcul)} - 2V_{g\,(tables)}$$

ce qui devient

$$V_g = V_{g\,tables} + \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}_{(exp.)} - \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}_{(c.)}$$

on aura donc

$$\Delta V_g = \Delta \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}_{(exp)} + \Delta \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}_{(c.)}$$

./.

Le premier terme représente l'erreur de mesure de la différence des valeurs propres. Cette erreur dépend principalement de la diffraction de Fraunhoffer (chap.II B 1), et de l'étalonnage du diffracteur. Nous allons dans la suite de ce chapitre étudier l'erreur sur le second terme $\frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}_{(c.)}$ en nous posant les questions suivantes :

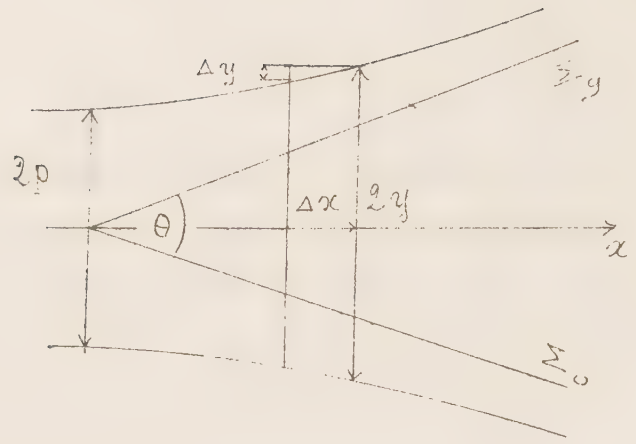
1) La position du point d'onde est fournie par le diagramme de Kikuchi avec une certaine erreur. Cette erreur a t-elle une grande influence sur l'incertitude du résultat?
2) Quelle est la contribution des différents V_h systématiques au calcul de $\gamma_1 - \gamma_2$?
3) Est-il indispensable de tenir compte de l'absorption dans le calcul ?

III-C-1 - INFLUENCE DE L'ERREUR SUR LA POSITION DU POINT D'ONDE DANS LA DETERMINATION DE V_g

Une différence de valeurs propres est représentée par la distance entre 2 nappes de dispersion mesurée le long d'un axe parallèle à ko et dont l'abscisse rapportée au point de Läue dépend de l'orientation du faisceau incident par rapport au réseau cristallin. Supposons que cette abscisse soit mal déterminée et que les nappes de dispersion ne soient pas parallèles; une erreur Δx entrainera une erreur $\Delta(\gamma_1 - \gamma_2)/2$ donc ΔV_g que nous allons maintenant évaluer.

Quelles sont les valeurs de x pour lesquelles l'erreur sur la position du point d'onde Δx entrainera une erreur $\Delta \frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2}$ donc ΔV_g très supérieure à l'erreur de mesure sur le diagramme de réfraction ? Nous nous servirons de la théorie dynamique à deux faisceaux. Cette approximation ne met pas en cause les ordres de valeur des ΔV calculés.

./.



Dans ce cas la surface de dispersion est constituée par une hyperbole et l'on a

$$\gamma_1 - \gamma_2 = 2y = 2p\sqrt{1+W^2}$$

où p est le paramètre de l'hyperbole

$$p = \frac{U_g}{2K} = \frac{V_g}{2E} \times K \qquad \text{(III-11)}$$

et W le paramètre d'erreur

$$W = s_g t_g = \theta \times x \times \frac{E}{V_g K} = \frac{E\ g}{V_g\ k^2} x \qquad (III-12)$$

x distance du point d'onde au point de Läue est déterminé au moyen du diagramme de Kikuchi, ($x = g\frac{s_K}{L}$, s_K étant la distance de la tache g à la ligne de Kikuchi de même indice, et L la longueur de diffraction.

La relation III 10 fournit :

$$\Delta y = p\frac{W dW}{\sqrt{1+W^2}} \# p\, W dW$$

car W restera inférieur à 0,5. En tenant compte de III-11 et 12 on obtient :

$$\Delta\frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2} = \Delta V = \left(\frac{E^2 g^2}{V_g K^4}\Delta x\right) x$$

./.

Δ V représentant ici l'erreur sur la différence de valeurs propres exprimée en volts. Si l'on s'en tient aux microscopes électroniques classiques et si l'on suppose que Δ x est de l'ordre de 0,01 $\mathring{A}^{-1}$ on obtient :

$$x_{Max} = \frac{V_g}{200 g^2} \Delta V \qquad (III - 13 bis)$$

$x_{max.}$ devient vite très petit lorsque g augmente. Prenons par exemple les réflexions : (200) avec g $\simeq$ 0,5 $\mathring{A}^{-1}$ et (400) avec g $\simeq$ 1 $\mathring{A}^{-1}$. Interdisons nous, par exemple, une erreur supérieure à 0,1 V sur V_g : il faudra avoir :

$W_{200} < 0,15 \qquad W_{400} < 0,07$

Ce qui correspond aux valeurs de x suivantes :

	x (200)	(400)
Mg O	0,012 ($\mathring{A}^{-1}$)	0,002
Ni O	0,015	0,003

Pour (200) les valeurs de x sont supérieures à l'erreur de mesure mais pour (400) elles sont très inférieures à la précision expérimentales. Autant dire qu'il est toujours nécessaire de se placer dans les conditions de Läue pour espérer faire des mesures correctes des valeurs V_g .

Voyons alors quelle incertitude sur l'incidence on peut se permettre au voisinage du point de Läue pour que l'erreur sur V reste inférieure à la limite Δ V que nous nous sommes imposée. III-10 fournit alors :

$$dy = \frac{P W^2}{2}, \text{ soit } \Delta x = \frac{k^2}{E g} \times \sqrt{2 V_g \Delta V} \qquad (III - 14)$$

et pour les électrons d'énergie moyenne

$$\Delta x = \frac{\sqrt{V_g}}{100 g} \Delta V \qquad (III - 14 bis)$$

Δ x cette fois ne décroit pas trop vite quand g augmente. Reprenons l'exemple précédent, et donnons l'ordre de grandeur de l'incertitude tolérée autour du point de Läue.

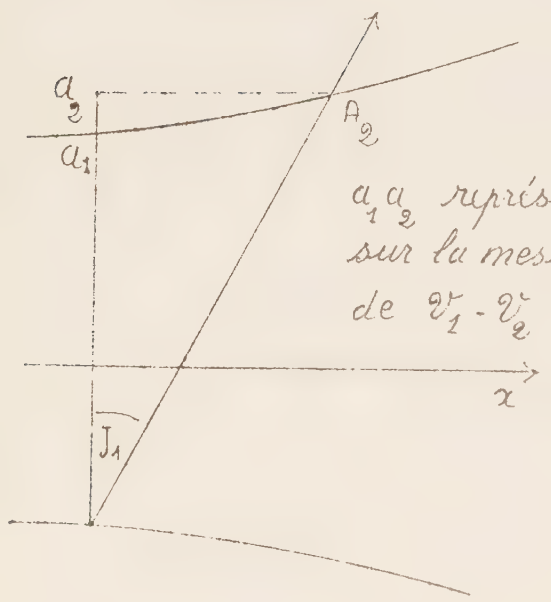
./.

	Δx (200)	(400)
Mg O	$\Delta x \leq 0{,}015$	0,006
Ni O	0,021	0,007

On voit que même pour (400) les conditions de détermination de x sont suffisantes pour mesurer Vg avec une précision comparable à la précision expérimentale.

Soulignons que la valeur de Δ x proposée de 0,01 est susceptible de varier d'un coefficient 2 ou 3 selon l'orientation des lignes de Kikuchi par rapport à la direction de réfraction, car elles sont d'autant plus fines qu'elles sont davantage parallèles à la direction de réfraction.

Notons également que si la projection de la normale V_1 sur le plan Π est très inclinée sur le faisceau incident, on ne peut plus dire que la différence de valeurs propres soit égale à $A_1 A_2 \cos i_1$ comme cela est nécessaire pour pouvoir comparer mesure et calcul des valeurs propres (III A 2 et schéma ci-contre).



Au voisinage du point de Läue on doit avoir :

$$tg\, j_1 = \frac{x}{2p} = \frac{x E}{V_g K} \qquad (III-15)$$

Voyons quelle peut être alors la valeur maximum pouvant être atteinte par $t_g\, i_1$ pour que l'abasse x de A_2 n'introduise pas une erreur supérieure au 5ème de V expérimental. En remplaçant (III-15) dans III-14 on obtient:

$$tg\, j_1 = \frac{K}{y}\sqrt{\frac{\Delta V}{2V}} \qquad (III-16)$$

Les applications numériques de cette formule montrent que $tg\, i_1$ peut atteindre quelques unités sans altérer la précision sur V_g, et i_1 peut dépasser 45 degrés pratiquement dans tous les cas expérimentaux.

III-C-2 - CONTRIBUTION DES DIFFERENTES REFLEXIONS SYSTEMATIQUES AU CALCUL DES PSEUDOPOTENTIELS PROPRES

Nous venons de voir combien il est important de déterminer l'incidence du faisceau avec précision. Il s'agit maintenant de déterminer le poids des interactions systématiques dans la variation des valeurs propres.

Nous avons montré dans le chapitre précédent qu'il était favorable d'effectuer les mesures pour $s_g = 0$, nous resterons donc dans les conditions d'incidence pour effectuer cette étude.

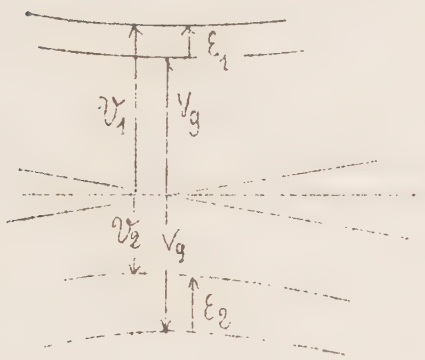


Diagramme des "potentiels propres" (Surface de dispersion où "y" est directement exprimé en Volts)

Lorsque l'on passe du cas à 2 faisceaux au cas à N faisceaux, les valeurs propres qui, étaient

$$\mathcal{V}_1 = + V_g \quad , \quad \mathcal{V}_2 = -V_g$$

deviennent désormais

$$\mathcal{V}_1 = V_g + \varepsilon$$
$$\mathcal{V}_2 = -V_g + \varepsilon$$

Ce sont les valeurs de ε que nous allons étudier de façon analytique en contrôlant à l'ordinateur dans différents cas la validité des hypothèses de Bethe (voir annexe A-III) qui conduisent au calcul des potentiels dynamique

Cette confrontation du calcul analytique et numérique permettra :

- d'observer les propriétés des valeurs propres
- de déterminer combien de faisceaux sont nécessaires pour effectuer un calcul correct, et de fixer les conditions dans lesquelles le calcul manuel est suffisant.
- d'évaluer le poids de l'erreur des V systématiques (fournis par des tables) sur l'erreur du Vg à mesurer.

- et surtout d'évaluer simplement l'influence des potentiels imaginaires V'_h sur la partie réelle des valeurs propres. cela permettra de reconnaître la limite de validité de la méthode de Metherell (1969) qui néglige l'absorption dans le calcul des potentiels propres et des vecteurs propres normalisés, et qui obtient l'absorption des différents champs d'ondes i par une méthode de perturbation. Cette méthode est couramment utilisée dans les calculs d'intensité (Serneels (1971) Renard (1971), par exemple).

Nous allons considérer ces questions lorsque le Vg à mesurer correspond à une réflexion du premier ordre (111 par exemple) puis au second ordre, en tenant compte des résultats obtenus dans l'annexe III. Dans cette annexe, nous avons été conduit à alléger nos notations : soit une file systématique de pas réciproque nous appellerons V_1 la première composante du potentiel de Fourier, sur cet axe, V_2 la seconde... etc... et les taches seront numérotées dans l'ordre donné par le schéma ci-dessous.

et nous appelerons::

$$W_i = s_i \frac{K}{U_i} \quad ; \quad i = 1, 2, 3$$

le paramètre d'erreur des réflexions systématiques. Les potentiels propres (représentés par des majuscules italiques) seront numérotés par énergie cinétique décroissante. $\mathcal{V}_1$ correspondra donc à la nappe de dispersion intense la plus haute, donc à l'énergie cinétique la plus forte.

a) Réflexion du premier ordre sur une file systématique

On montre dans l'annexe III que

$$\left.\begin{aligned} \varepsilon_1 &= \frac{(V_1 - V_2)^2}{2E\lambda^2 g^2 + \mathcal{V}_1} + \frac{(V_2 - V_3)^2}{6E\lambda^2 g^2 + \mathcal{V}_1} + \cdots \quad \# \quad \frac{(V_1 - V_2)^2}{2D + V_1} + \cdots \\ \varepsilon_2 &= \frac{(V_1 + V_2)^2}{2D + \mathcal{V}_2} + \frac{(V_2 + V_3)^2}{6D + \mathcal{V}_2} + \cdots \quad \# \quad \frac{(V_1 + V_2)^2}{2D - V_1} + \cdots \end{aligned}\right\} \text{III-16}$$

en posant : $D = E\lambda^2 g^2$

$\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$ n'étant pas connues au départ on peut très bien les remplacer dans un premier temps par V_1 et $-V_1$, quitte à recommencer le calcul avec la valeur propre ainsi calculée si le $\mathcal{E}$ obtenu n'est pas très faible devant $\mathcal{Q}D$

On observe les propriétés suivantes :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2 > 0 \\ \mathcal{E}_1 < \mathcal{E}_2 \end{cases}$$

La comparaison du calcul des valeurs propres au moyen des formules III 16 avec celles obtenues par l'ordinateur (voir tableau I annexe III) fournissent les indications suivantes :

1) La première valeur propre (qui définit le champ d'onde passant près des noeuds du réseau) est peu sensible au couplage des ondes faibles entre elles en effet, même lorsqu'on prend 6 faisceaux le calcul machine, qui tient compte de ces couplages, et le calcul manuel qui les néglige fournissent pratiquement les mêmes résultats comme le montre le tableau ci-dessous.

	$\mathcal{V}_1$ (4 faisceaux)		$\mathcal{V}_1$ 6 faisceaux	
	Formule III-16	machine	F..III-16	machine
MgO (200)	7,32 V	7,32		
NiO (200)	11,48	11,52		
Or (200)	17,71	17,76	17,78	17,79
Or (III)	19,53	19,63	19,60	19,65

(Tableau de valeurs de $\mathcal{V}_1$ en volts)

2) La seconde valeur propre, au contraire est très sensible au couplage des ondes faibles entre elles. Le tableau suivant montre en effet que si dans le cas à 4 faisceaux les résultats sont comparables tant que W_{-1} et W_2 ne sont pas trop petits, il n'en va plus de même lorsqu'on introduit 6 faisceaux.

./.

			4 FAISCEAUX		6 FAISCEAUX	
	W_{-1}	W_2	F.III-16	Machine	F.III-16	Machine
MgO (200)	5	10	-5,28	5,33	-5,13	-5,27
NiO (200)	3,15	6,2	-6,52	-6,52		
Or (200)	2	4	-6,05	-6,75	-5,05	-6,59

(Tableau des valeurs de V_2)

Notons que le calcul par les potentiels dynamiques majore les potentiels propres en valeur algébrique, cela veut dire que le couplage des faisceaux faibles entr'eux a tendance à réduire l'effet des potentiels dynamiques. On voit d'ailleurs sur le tableau que le passage de 4 à 6 faisceaux ne modifie pas énormément les valeurs propres dans la réalité. Ainsi lorsque l'on doit faire le calcul à la main, il n'est pas nécessaire d'utiliser plus de quatre faisceaux l'erreur étant toujours notablement inférieure au second terme de l'expression des ε_i de (III-16).

Poids de l'incertitude des Vh systématiques sur la détermination des Vg mesurés

On démontre dans l'annexe que :

$$\Delta V_g = \frac{-V_1 \Delta V_2}{D - V_2} \quad \# \quad \frac{-\Delta V_2}{W_{-1}} = B_1 \Delta V_2$$

Application numérique

	W_{-1}	B_1	Valeur exacte de B_1
Mg O 200	5	-0,20	- 0,22
Or 200	2	-0,50	- 0,44
Ni O 111	4,3	-0,23	
Or 111	1,4	-0,70	

On a contrôlé à l'ordinateur que les évalutations de ΔV_g sont correctes.

./.

b) Réflexion du second ordre sur une file systématique

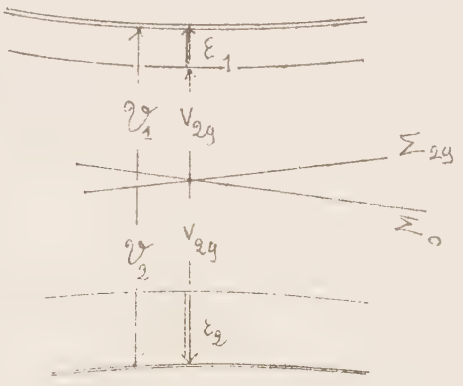
Schématisons la position de la sphère d'Ewald par rapport à la file systématique

$$\varepsilon_1 = \frac{(V_1 - V_3)^2}{3D + \vartheta_1} + \frac{(V_2 - V_4)^2}{8D + \vartheta_1}$$

$$\varepsilon_2 = \frac{(V_1 + V_3)^2}{3D + \vartheta_2} - \frac{2V_1^2}{D - \vartheta_2} + \frac{(V_2 + V_4)^2}{8D + \vartheta_2} \qquad \text{III-18}$$

où $D = E\lambda^2 g^2$ ($\vec{g}$ figuré ci-contre)

et $\vartheta_1 \neq V_2$, $\vartheta_2 \neq -V_2$



Propriétés

- ε_1 est positif, faible, tout à fait indépendant de l'interaction du faisceau (+1) avec les faisceaux 0 et 2
  Son calcul par la relation III-18 est toujours exacte
- ε_2 est négatif.

L'interaction du faisceau +1 avec les autres faisceaux à un poids très important dans la détermination de ε_2

- La formule III-18 diverge assez vite de celle fournie par l'ordinateur, ce qui veut dire que le couplage des faisceaux faibles entre eux joue un rôle non négligeable, sur la détermination de ε_2 . Si l'on est obligé d'utiliser III-18 on peut utiliser la formule de correction suivante, obtenue de façon empirique :

$$\Delta\varepsilon_2 = 0{,}22 \frac{V_2}{W_1^2}$$

valable tant que

$$|W_1| > 1{,}5$$

voir tableau V de l'annexe III

./.

- Lorsque l'on passe de 5 à 7 faisceaux on ajoute le dernier terme de l'expression de $\mathcal{E}$ dans III-18. On a vérifié que la variation de valeur propre ainsi calculée est exacte.
- Sachant que l'on a

$$\Delta V = \frac{\Delta(\mathcal{V}_1 - \mathcal{V}_2)}{2} = \frac{\Delta\,\mathcal{E}_1 - \mathcal{E}_2}{2}$$

On obtient un critère très simple pour savoir combien de faisceaux introduire pour le calcul, pour se contenter de 5 faisceaux on doit avoir :

$$\frac{2\,V_2 V_4}{8D} \ll \Delta V_{2g} \text{ experimental}$$

avec $\frac{2\,V_2 V_4}{8D} = \frac{V_2 V_4}{4E\lambda^2 g^2} = \frac{V_4}{W_{-2}}$ (III-19)

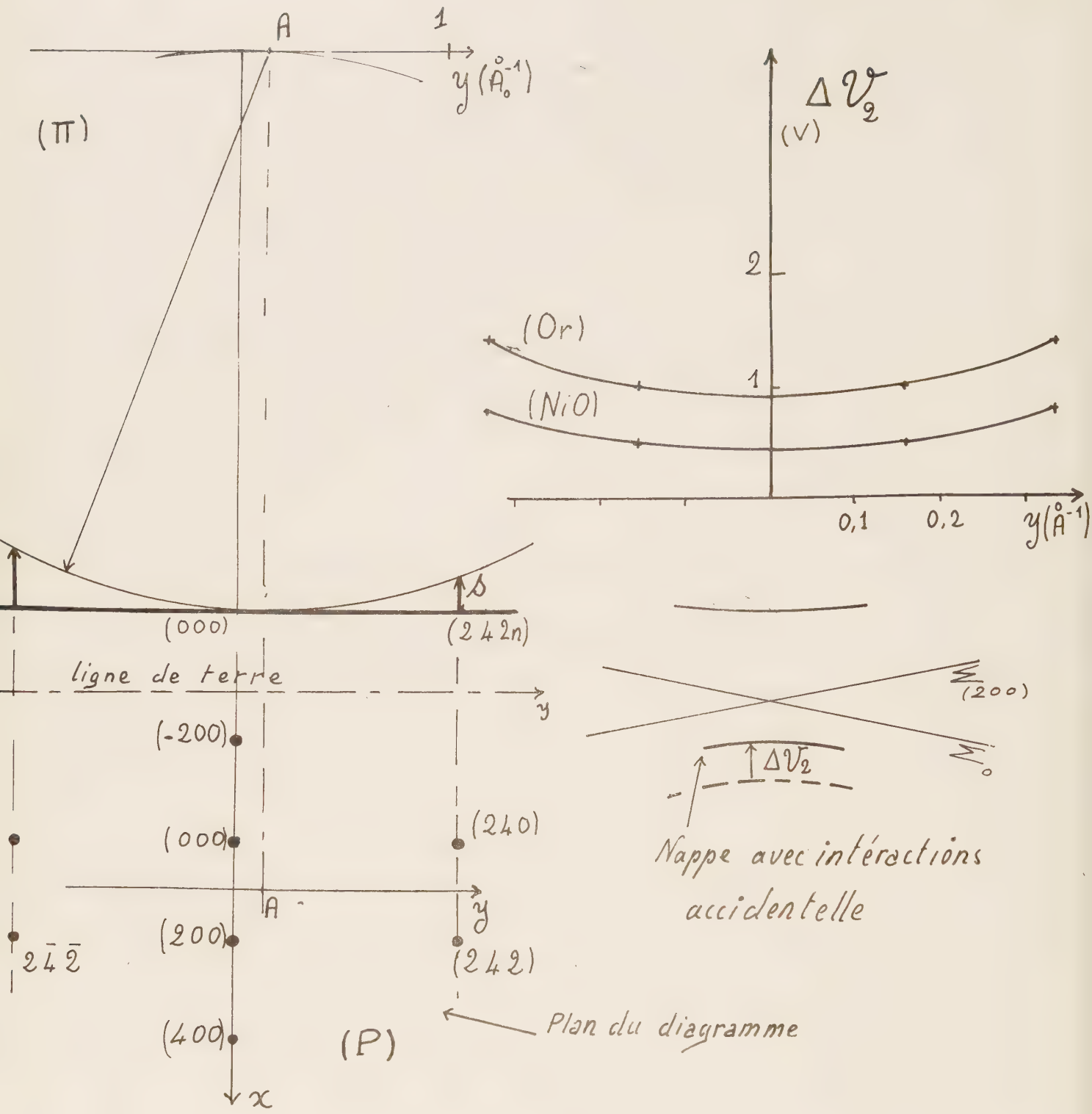
donnons quelques valeurs de cette expression.

	W_{-2}	$\frac{V_4}{W_{-2}} = \Delta V_{2g}$
Mg O (400)	39	0,03 V
Ni O (222)	14,5	0,17 V
Or (400)	15,1	0,22 V

Par exemple : pour Ni O (222) on doit utiliser 7 faisceaux si l'on veut obtenir V_{2g} avec une précision de 0,1 volt.

On voit donc que si l'on désire mesurer un terme de Fourier Vg d'ordre 2 sur la file systématique, on est très souvent obligé d'utiliser 7 faisceaux alors que 4 faisceaux suffisaient pour des réflexions d'ordre I. Malheureusement il n'est guère possible d'envisager l'absence de faisceaux accidentels n tel que $W_n < 20$. (Voir remarque) pour ce calcul on sera obligé de faire intervenir un plus grand nombre de faisceaux. Notre méthode restera cependant valable tant qu'aucune tache accidentelle ne sera en position de Bragg, et le calcul d'erreur présenté dans ce texte pourra continuer à être utilisé.

./.



Lorsque les vecteurs $\vec{s}$ des réflexions accidentelles, symétriques par rapport à l'axe systématique x, sont du même ordre de grandeur, la perturbation ΔV_2 apportée par les interactions accidentelles est peu sensible à la position du point d'onde.

Remarque :

Considérons le plan réciproque défini par l'axe systématique et les taches accidentelles. On a vérifié qu'il est avantageux de situer le centre L de la sphère d'Ewald voisinage de la normale N au plan réciproque et médiatrice de OG (voir schéma).

Cela conduit en effet à des propriétés intéressantes.

1) On est sûr que la sphère ne passera pas par des taches accidentelles provenant de plans réciproques voisins de ceux que l'on a choisi, ou alors ces taches ont de très forts indices.

2) On peut se permettre une erreur appréciable Δ y sur la position de L autour de cette direction. La variation de la valeur propre $\mathcal{V}_2$, due aux interactions accidentelles: $\Delta_A \mathcal{V}_2$, dépend peu de y au voisinage de N. Le schéma ci-contre donne la variation de $\Delta_A \mathcal{V}_2$ en fonction de y pour un plan réciproque (02$\bar{4}$)(h accidentel = 2,2 $\mathring{A}^{-1}$ pour Mg O et Ni O).

3) Les interactions accidentelles n'ont pratiquement aucune action sur la valeur propre $\mathcal{V}_1$. On l'observe par le calcul machine, et on peut le justifier par une relation qui ressemble à III-16, dans la mesure où, là encore, les interactions des faisceaux faibles entr'eux ont peu d'effet sur la 1ère valeur propre.

Poids de l'incercitude des Vh systématiques sur la détermination des V_{2g} mesurés.

Nous avons démontré dans l'annexe III que ΔV_{2g} mesuré (= ΔV_2) était fourni par la relation

$$\Delta V_{2g} = \frac{2V_1 \Delta V_3 + (6V_1 - 2V_3)\Delta V_1}{3D}$$

./.

en remarquant que ΔV_1 , dans le calcul, a un rôle prépondérant et que le V_3 calculé doit, en principe être assez juste, on peut adopter une relation plus simple :

$$\Delta V_{2g} = \frac{2V_1}{D - V_2} \times \Delta V_1 = B_2 \Delta V_1 \qquad III\text{-}20$$

Rappelons quelques résultats de l'annexe III

Mg O (400)	Ξ(calcul III-20) 0,38	Ξ(calcul matriciel) 0,28
Or (400)	0,73	0,35

La relation III-20 majore sensiblement l'erreur calculée surtout pour les plans réticulaires très réfléchissants, l'ordre de valeur obtenu est toutefois convenable.

é) Erreur absolue sur les termes mesurés en fonction de l'erreur de mesure expérimentale

Nous avons vu au chapitre III-C que Vg était obtenu à partir de la relation suivante :

$$V_g \text{ recherché} = \frac{\vartheta_1 - \vartheta_2}{2} - \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2}$$

($\frac{\vartheta_1 - \vartheta_2}{2}$: expérimental ; $\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2}$: calculé)

par suite l'erreur sur V_g se répartit en deux termes :

$$\Delta V_g = \Delta \vartheta_{exp} + \Delta \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2} \qquad (III\text{-}21)$$

$\Delta\vartheta$ dépend de la mesure de $\vec{\delta}$: déviation par réfraction du faisceau dans le prisme, $\Delta \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2}$ dépend de la précision avec laquelle on détermine l'incidence du faisceau sur le réseau cristallin (III-C_1) et de la précision avec laquelle on connait les termes V_h souvent calculés à partir du facteur de structure des rayons X. Or, nous venons de voir

./.

que lorsque V_g est d'ordre 2 c'est l'erreur sur le terme V_1 qui prédomine, lorsque V_g mesuré est d'ordre 1 c'est le terme V_2 qui prédomine (relations III-17 et III-20).

Pour faire des mesures correctes, on est donc conduit à mesurer simultanément les réflexions du premier et du second ordre sur les files systématiques, et à exprimer l'erreur absolue sur $\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2}$ en fonction de l'erreur expérimentale $\Delta\vartheta$ seule.

La relation III-17 donne

$$\Delta V_1 = B_1 \Delta V_2$$

avec

$$\Delta V_2 = \Delta\vartheta_{exp.} + \Delta V_2 \quad (\text{fourni par } III\text{-}20)$$

de même, on tire de III-20

$$\Delta V_2 = B_2 \left(\Delta\vartheta_{exp.} + \Delta V_1 \text{ fourni par } III\text{-}17 \right)$$

si on appelle

$$x = \Delta V_1$$
$$y = \Delta V_2$$
$$|x_E| = |y_E| = \Delta\vartheta exp.$$

On voit que A 17 et A 20 conduisent à un système de 2 équations à 2 inconnues

$$\left.\begin{aligned} x - B_1 y &= B_1 x_E \\ B_2 x + y &= B_2 y_E \end{aligned}\right\} \qquad \text{(III 22}$$

et l'on trouve

$$\left.\begin{aligned} x &= \frac{|B_1| + |B_1 B_2|}{1 - B_1 B_2} \Delta\vartheta_E \\ y &= \frac{B_2 + B_1 B_2}{1 - B_1 B_2} \end{aligned}\right\} \qquad III\text{-}23$$

$B_1 = -\frac{1}{W_{-1}}$ et si W_1 est assez grand,

$B_2 = \frac{V_1}{D} = \frac{2}{W_{-1}}$ W_{-1} étant le même que précédemment et concerne le cas de diffraction d'ordre 1.

On a alors : $x = \frac{W_{-1} + 2}{W_{-1}^2 + 2} \Delta V_{exp}$

$y = \frac{2 W_{-1} + 2}{W_{-1}^2 + 2} \Delta V_{exp}$ } III - 24

avec ΔV_1 pratique $= \Delta V_{exp.} + x$

ΔV_2 " $= \Delta V_{exp.} + y$

Ces deux dernières relations (III 24) permettent d'obtenir sans peine un ordre de valeur de la précision à espérer pour une détermination donnée, mais elles majorent beaucoup l'erreur quand W_{-1} devient inférieur à 3 comme en témoignent les résultats ci-dessous, ou l'on prend $x' = x/\Delta V$

pour file (200)	W_{-1}	x'_{24}	y'_{24}	x'_{23}	y'_{23} volts
Mg O	5	0,26	0,43	0,24	0,31
Au	2	1	1,3	0,52	0,53

x'_{23} et y'_{23} : calcul de x' et y' avec la formule III-23. On a pris les valeurs B_1 et B_2 exactes. x'_{24} : calcul de x'_{24} au moyen de la formule 24 qui est approximative

W_{-1} pris pour la réflexion principale d'ordre 1

$$\left(W_{-1} = \frac{2 E \lambda^2 g^2}{2 V_g}\right)$$

On aperçoit donc que le ΔV_g pratique n'excédera que rarement la quantité :

$$1,5 \times \Delta V \text{ expérimental}$$

d) <u>Influence de l'absorption sur la partie réelle des valeurs propres</u>

Lorsque l'on tient compte de l'absorption on est amené à définir un pseudopotentiel complexe

$$\bar{V}_g = V_g + j V'_g$$

donc un $\mathcal{E}$ complexe

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_r + j \mathcal{E}'$$

./.

ε_n est en principe différent du ε calculé lorsque l'on néglige l'absorption. Il est donc intéressant de calculer :

$\Delta_i \varepsilon = \varepsilon - \varepsilon_n$ ce qui représente la variation de valeurs propres lorsque l'on néglige l'absorption.

On donne en annexe III les relations fournissant la variation des valeurs propres $\Delta_i \varepsilon_1$ et $\Delta_i \varepsilon_2$ lorsque l'on introduit l'absorption :

- lorsque la réflexion intense est une tache de premier ordre (relation A 18)
- lorsque la réflexion est une tache du second ordre (A 21)

Retenons de ces relations les propriétés suivantes :

- $\Delta_i \varepsilon$ est toujours de signe contraire à ε réel
- $\Delta_i \varepsilon_1$ est toujours négligeable
- $\Delta_i \varepsilon_2$ devient mesurable lorsque les V_g et V'_g sont importants

V_g de 10 à 20 volts
V'_g de 3 à 5 volts

Par exemple pour les réflexions (200) et (400) sur l'or,

$\Delta_i \varepsilon_2$ est de l'ordre de 0,5 volts

- Le calcul de $\Delta_i \varepsilon_2$ est certainement convenable pour une diffraction d'ordre 1 puisque les approximations conduisant à III 16 sont justifiées, mais pour les diffractions d'ordre 2 on ne peut qu'espérer obtenir un bon ordre de grandeur.

En conclusion on peut dire que nos formules permettant de calculer les valeurs propres sont convenables tant que les V_h ne sont pas trop grands.(Mg O, cuivre, Ni O..) mais au delà, et compte tenu du fait qu'il est impossible de négliger les interactions accidentelles pour la réflexion d'ordre 2, on a avantage à utiliser un ordinateur pour calculer les valeurs propres de matrices complexes.

- IV -

METHODE EXPERIMENTALE ET RESULTATS

Les mesures ont été effectuées sur un JEM 5 G au moyen d'une technique qui s'apparente à celle de la microdiffraction et qui sera développée ultérieurement.

Cet appareil se prête bien à ce genre de mesures. Son double objectif permet d'obtenir plusieurs constantes de microdiffraction. Son double condenseur fournit un faisceau très parallèle, la grande perte de lumière qui en résulte habituellement ne constitue pas un inconvénient dans notre technique.

Cependant quelques défauts dus à l'ancienneté de l'appareil ont fait que la précision des résultats n'étaient pas toujours en rapport avec la finesse des photographies, certains paramètres n'ayant pu être convenablement controlés au moment de la prise de vue.

Dans la pratique nous avons dû nous limiter sur le 5 G aux expériences suivantes :

1) Mesure du potentiel interne moyen sur des cristaux à forme géométrique quelconque en faisant une moyenne des effets dynamiques.
2) Comparaisons des valeurs propres mesurées sur le Ni O à celles calculées à partir de conditions d'incidences trop indirectement définies pour que l'on puisse mesurer V_9 avec précision.

./.

IV-A - MESURE D'UNE VALEUR PROPRE

Nous avons décrit en III-B le principe de la mesure d'une valeur propre $\mathcal{V}$ dont l'origine est ici l'énergie des électrons dans le vide. L'indice de réfraction correspondant étant donné par la relation

$$n = 1 + \frac{\mathcal{V}}{2E} \qquad (\mathcal{V} \text{ exprimé en volts})$$

et la relation II-3 permet d'exprimer $\mathcal{V}$ en fonction de la déviation δ du faisceau par réfraction. On obtient :

$$\mathcal{V} = \frac{2E}{L} \times \frac{\delta}{|n_1 \operatorname{tg} i_1 + n_2 \operatorname{tg} i_2|} \qquad IV\text{-}1$$

Nous allons voir comment déterminer les éléments de cette formule dans le présent chapitre.

La mesure de λ et de la constante de microdiffraction du diagramme $L\lambda$ permet de calculer $\frac{L}{2E}$.

On mesure δ sur la plaque photographique :
Afin d'éviter le brouillage dû à la superposition de taches réfractées dans des prismes voisins mais de forme différentes et pour éviter que le faisceau direct ne noie la tache réfractée, on fécocalisera légèrement le diagramme. Cette technique est justifiée au paragraphe 2.

La quantité $(\vec{n}_1 \operatorname{tg} i_1 + \vec{n}_2 \operatorname{tg} i_2)$ est fournie par la platine goniométrique si on connait l'ouverture A du prisme, mais on peut se passer de cette donnée par une méthode logarithmique que l'on décrira au paragraphe 3.

IV-A-1 - MESURE DE 2 E/L

a) Détermination de λ en vue de calculer E

On a mesuré $L_1\lambda$ à partir du diagramme de diffraction en haute résolution (aucune optique entre l'échantillon et la plaque photographique).

./.

Les anneaux de l'aluminium furent mesurés au moyen d'un banc de mesure muni d'une lunette de visée permettant des pointés d'une précision de 1 à 2/100 mm.

L_1, mesuré à l'occasion d'un démontage de la colonne est connu à 0,2 % près (compte tenu de la fluctuation éventuelle du niveau de la plaque photo).

En pratique λ est déterminé à 0,3 % près.

On a métallisé les hublots du microscope pour supprimer l'ovalisation des anneaux par charges électrostatiques. On a dû mesurer λ très souvent, quelques fois même en début et en fin d'expérience lorsqu'à l'occasion d'un "claquage" la haute tension semblait modifiée.

b) Détermination de L, longueur de Microdiffraction

L est calculé à partir de la constante $L\lambda$ des diagrammes de microdiffraction sur lesquels on veut mesurer la réfraction δ. On a :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda} + \frac{\Delta R}{R}$$

ΔR erreur de mesure de la distance R entre deux taches. A cause de la courbure de champ qui défocalise un peu les taches éloignées, $\frac{\Delta R}{R}$ est bien de l'ordre de 1 %, mais cette valeur varie beaucoup selon les cas expérimentaux.

Remarquons enfin que E varie en $1/\lambda^2$ et L en $1/\lambda$ et que l'on a pour erreur finale :

$$\frac{\Delta 2E/L}{2E/L} = \frac{\Delta \lambda}{\lambda} + \frac{\Delta R}{R}$$

Dans nos expérienoes, L était de l'ordre de 1000 à 1500 mm

IV-A-2 - MESURE DE δ

De nombreux auteurs ont tiré profit de la forme cubique des cristaux de Mg O obtenus par combustion du magnésium dans l'air, pour étudier la réfraction des électrons sur

./.

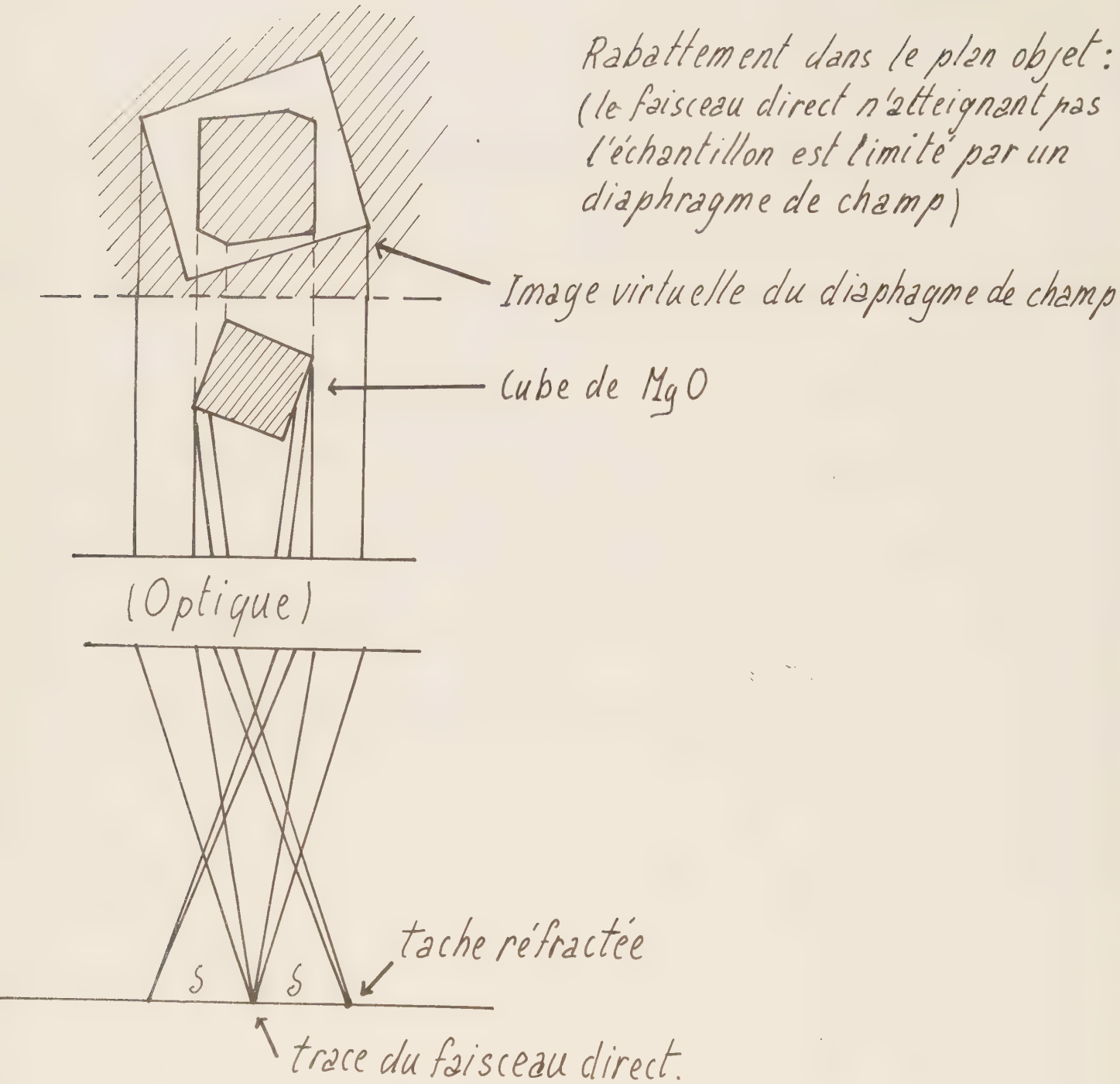


Figure IV-1

Mesure de la réfraction des électrons dans un cube de MgO

des taches diffractées en vue de mesurer Vo et Vh (Honjo (1953) Miyaké et Fujiwara (1963)...)

Nous avons effectué des mesures de Vo en (1966) sur le faisceau transmis par diffraction aux petits angles. Ferrier et Murray ont fait un travail analogue en (1968).

Compte tenu des réserves que nous avons faites en III-B-3 quant à la distorsion des mesures sur les taches diffractées ces travaux tirent partie de la symétrie de la figure de réfraction de sorte que l'on peut mesurer $2V$, et sans corrections spéciales si l'on utilise le faisceau direct. Si l'on s'arrange pour que le flux de lumière qui ne traverse pas le prisme soit limité au maximum par un diaphragme de champ (figure IV-1), l'intensité du faisceau incident qui se retrouve au foyer du système optique ne sera pas suffisamment intense pour masquer le doublet que l'on désire mesurer.

Les mesures sont donc possibles lorsque l'on a la chance d'isoler un seul cube de Mg O (leur taille est de l'ordre du micron).

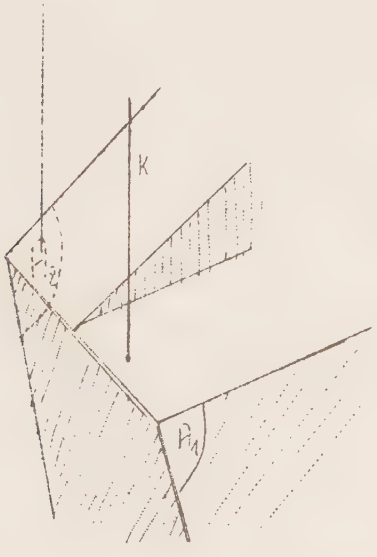
Malheureusement, il s'agit là d'un cas extrêmement favorable. En général on n'a pas 2 prismes en position symétrique, mais un seul, et on est bien obligé de se rapporter au faisceau direct, en outre si le prisme est obtenu par clivage, il est fort possible que l'on ait plusieurs prismes d'ouverture différente, par exemple, l'expérience montre qu'un clivage de C.F.C. selon des plans (200) fournit, au voisinage de l'arête des prismes de 90° ($\overrightarrow{200}$, $\overrightarrow{020}$) et des prismes de 135° ($\overrightarrow{200}$, $\overrightarrow{220}$). Il apparait donc un double problème, nous en avons donné la solution (1969) que nous développerons dans le présent chapitre :

./.

1) Comment repérer avec précision la tache centrale, et comment éviter que les électrons diffusés autour du faisceau direct ne voilent pas trop les taches réfractées ?

2) Comment séparer les électrons qui proviennent de prismes aux arêtes parallèles mais d'ouvertures différentes ?

La tache centrale, point d'impact du faisceau direct, est toujours très facile à reprérer dans le halo de lumière diffusée mais sa forme n'est pas toujours parfaitement régulière en raison de l'astigmatisme, et surtout des charges électriques qui s'accumulent sur le diaphragme de champ parfois imparfaitement propre et qui défléchissent légèrement les trajectoires des électrons passant près de ce diaphragme. Le pointé de la tache centrale ne correspond donc pas parfaitement à la direction du faisceau incident.



Pour la tache réfractée la difficulté de pointé est de deux ordres :

1) la tache risque d'être noyée dans le halo sombre qui entoure la tache centrale.
2) Si les réfractions s'effectue dans plusieurs prismes non identiques, à une valeur propre correspondent plusieurs valeurs de δ et les taches réfractées risqueront de se chevaucher et de ce brouiller (v.planche I C et D).

Pour tourner ces deux difficultés nous avons imaginé de faire nos mesures sur des diagrammes de diffraction légèrement défocalisée.

./.

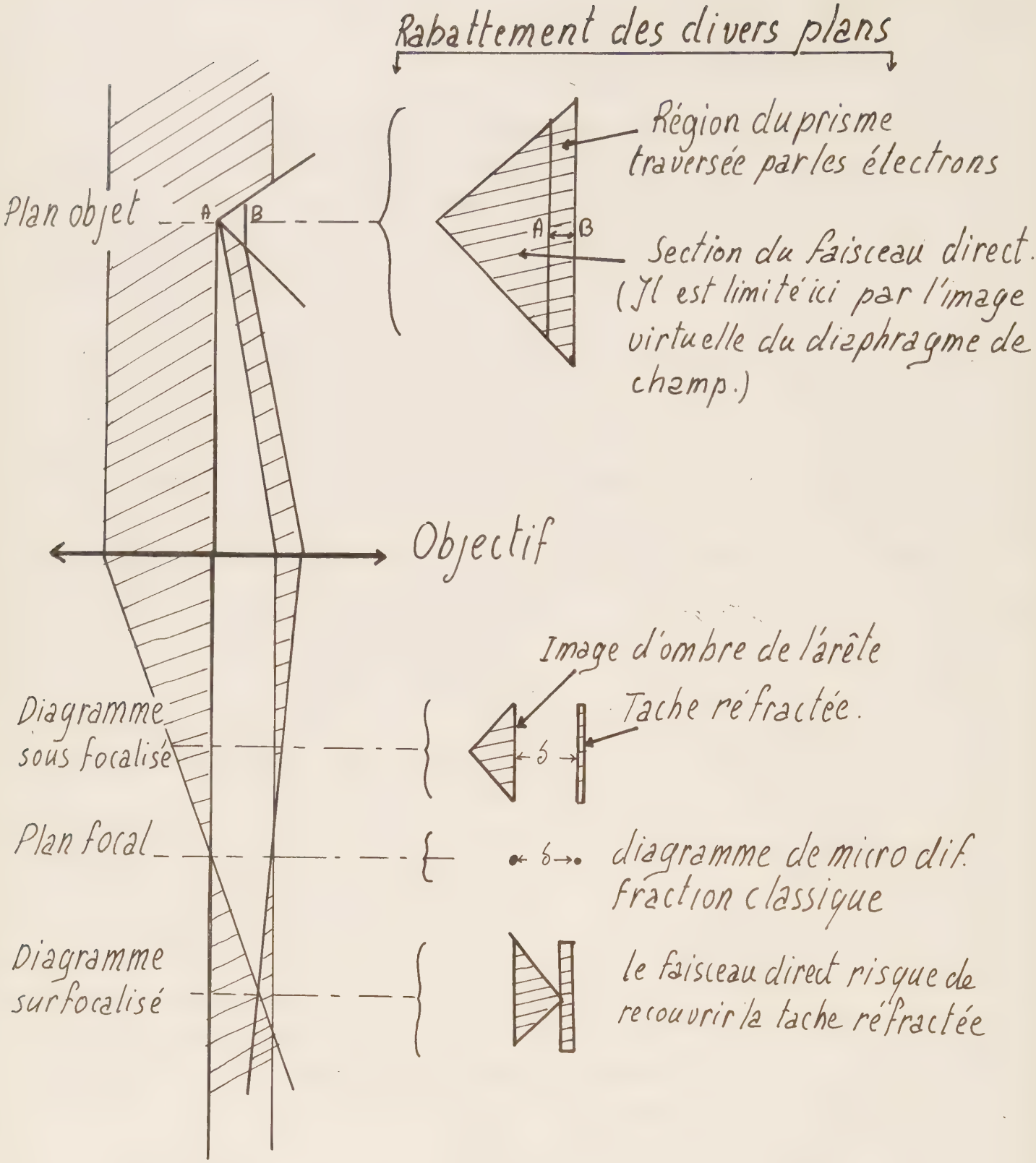


Figure IV-2

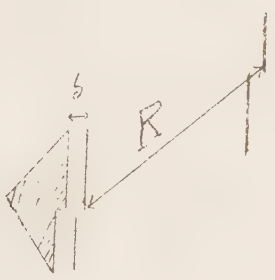
Microdiffraction défocalisée :
(la largeur de l'image d'ombre de la région du prisme AB traversée par les électrons est négligeable devant δ.)

Les diagrammes défocalisés

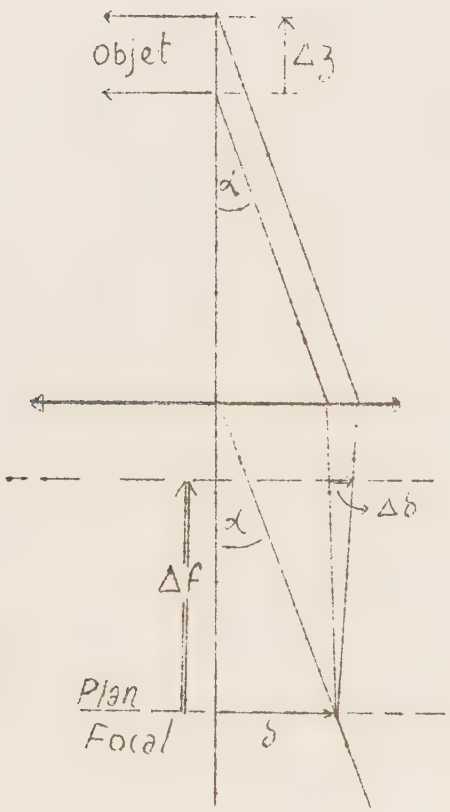
Compte tenu de l'ordre de valeur du coefficient d'absorption des électrons d'énergie moyenne (le libre parcours moyen des électrons "cohérents" est de 330Å pour le Mg O 170 Å pour le cuivre, 80 Å pour l'or...) on peut dire que le front de l'onde incidente susceptible d'être transmise par le prisme est une bande parallèle à l'arête faisant au plus 400 Å de large. Si, en défocalisant le diagramme on s'arrange pour que l'image d'ombre de cette bande ait une largeur très inférieure au profil qu'aurait la tache compte tenu de la diffraction de Fraunhoffer, on peut considérer que l'on est toujours dans le cas de la diffraction à l'infini. Par exemple dans le cas où la défocalisation correspond à un grossissement de 250, l'image de la zone du prisme traversée par les électrons sera de $\frac{1}{100}$ mm, la tache a toujours une largeur supérieure à cette valeur. Dans nos conditions d'expérience.

La figure IV-2 montre que le diagramme doit être sous focalisé, sans quoi la partie du faisceau qui ne traverse pas le prisme se superpose à la tache réfractée.

La longueur de diffraction apparente sera ici calculée à partir de la mesure de la distance R de points homologues sur la tache directe et diffractée. Ces points étant matérialisés par les irrégularités des prismes. Bien entendu δ est matérialisé par la distance des franges réfractées à la ligne d'ombre (voir aussi planche 2)



./.



A noter que pour les diagrammes sous focalisés la constante de diffraction dépend du niveau z de l'objet comme le montre le schéma ci-contre, et on trouve, en prenant les notations de la figure :

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta \delta}{\delta} = \frac{\Delta z\, \Delta F}{F z}$$

or $\Delta F / F$ représente le grossissement de l'image d'ombre de l'objet par l'objectif. Il peut s'exprimer ainsi :

$$G_o = \frac{GM}{G_{o.c.}}$$

G_M grossissement du microscope
$G_{o.c.}$ grossissement, objectif coupé.
d'où la relation

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{\Delta \delta}{\delta} = \frac{\Delta z}{f_o} \times \frac{G_M}{G_{o.c.}}$$

fo est de l'ordre de 1 cm et $\frac{\Delta L}{L}$ est de l'ordre de 15 % par millimètre de dénivellation de l'objet. En fait cette erreur n'est à considérer que lorsque aucune tache diffractée n'apparaît sur l'écran.

Récapitulons les avantages pratiques apportés par le procédé de défocalisation, et qui sont mis en évidence sur la planche 1 a et b.

- la tache réfractée n'est pas masquée par la lumière diffusée par le faisceau direct.
- la région où sont effectuées les mesures n'est pas altérée par les charges électriques du diaphragme de champ (côtés de l'angle droit du triangle éclairé (voir vues de la planche 1).
- lorsque le cristal n'a pas une géométrie parfaitement régulière ou lorsque l'échantillon comporte plusieurs cristaux d'orientation voisine on peut très bien différencier

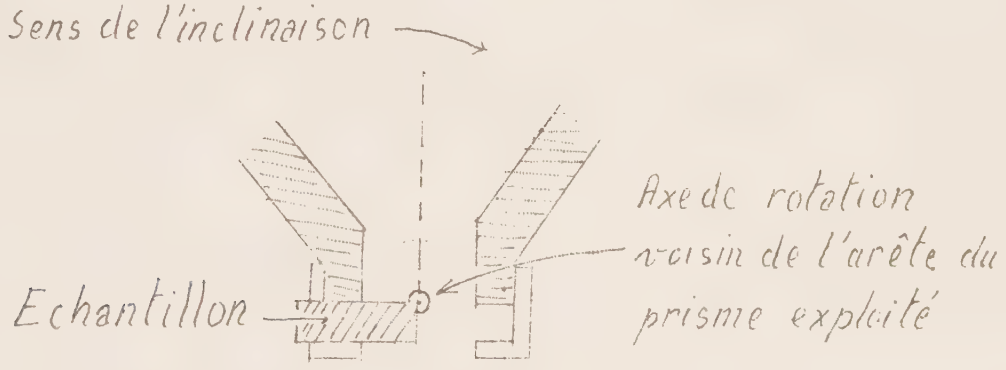
./.

les réfractions dans des zones voisines qui se brouilleraient si elles étaient superposées sur une tache focalisée (planche I c et d). Sélectionnée sur l'écran fluorescent, la zone photographiée laisse encore une possibilité de choix dans le domaine à exploiter (Planche I c.)

IV-A-3 - MESURE DE $(\vec{n}_1 tg\, i_1 + \vec{n}_2 tg\, i_2) = a$

Dans le chapitre qui suit nous considèrerons que l'arête est horizontale. En effet si l'arête est inclinée d'un angle ω il suffit de diviser $(tg\, i_1 + tg\, i_2)$ par $\cos \omega$ (voir II-A-3) pour obtenir la valeur exacte de l'angle de réfraction.

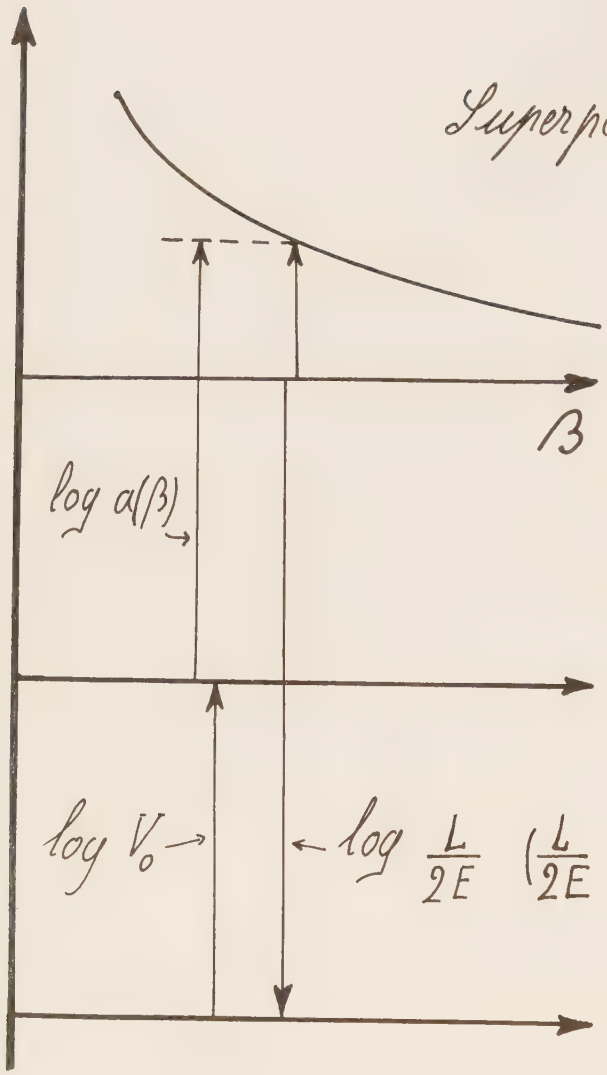
En général, les échantillons ont la forme de petits parallélepipèdes de quelques millimètres de côté. La face supérieure est appuyée sur le plan de référence de la platine gonio dont le niveau est assez bien défini, et est parallèle à l'un des axes de rotation. (voir figure).



l'autre étant normal à ce plan.

En fait c'est i_2 ou β son complément qui est le plus aisé à reprérer avec précaution, car l'incidence rasante sur la seconde face (petit côté du parallélepipède) peut être observée soit au moyen du diagramme de microdiffraction par réflexion, soit par observation de l'image d'ombre de l'échantillon (on repère l'angle pour lequel l'image d'ombre

./.



Superposition des courbes :
{ log a(β) (Abaque)
{ log δ(β) (Expérience)

"Origine" de la courbe log δ(β)

Origine de la courbe log a(β)
$\left(a = \frac{1}{tg\beta} + tg\left(A+\beta-\frac{\pi}{2}\right)\right.$

Ordonnée de $\log \frac{L}{2E}$ à partir de l'origine de la courbe δ(β)

Figure IV-3

Mesure de V au moyen d'une méthode logarithmique

de l'arête supérieure se superpose à celle de l'arête inférieure.

Bien entendu la connaissance de A permet de déterminer Vo car on peut écrire

$$a = \left(\frac{1}{tg\beta} + tg\left(A - \frac{\pi}{2} + \beta\right) \right) = \Sigma tg$$

mais on a vu plus haut que bien souvent plusieurs valeurs de A étaient possibles : la méthode graphique que nous allons décrire maintenant permet de mesurer les valeurs propres sans connaître A.

La forme logarithmique de (II-3) fournit :

$$\log \mathcal{V} = \log \delta(\beta) + \log \frac{2E}{L} - \log a(\beta) \qquad \text{IV-3}$$

On peut construire un abaque constitué par les courbes Log $(a(\beta)$ pour les valeurs de A susceptibles d'être rencontrées.

Supposons que $\mathcal{V}$ ne varie pas trop avec l'incidence (c'est ce qui se passe dans le cadre de la mesure du potentiel interne moyen), et que l'on mesure δ pour plusieurs incidences β : on peut construire sur un papier semi logarithmique de même module la courbe $\delta(\beta)$

Puisque l'on connait à l'avance la valeur de $\frac{2E}{L}$ la superposition de $\delta(\beta)$ à l'abaque fournit directement la valeur de $\mathcal{V}$ comme on le montre que la figure IV-3.

Cette superposition met en relief beaucoup d'informations :

- on voit immédiatement si certains dédoublements de tache sont dus au concours de deux valeurs propres, ou au fait que le faisceau se réfracte dans deux prismes successifs ce qui est relativement courant lorsque les prismes sont préparés par facettage chimique, ou lorsque l'échantillon clivé n'est pas très dur (NaCl..) on donne un exemple fig. IV-10 ou le tri de ces phénomènes est particulièrement évident.

./.

- la courbe $\delta(\beta)$ ne se superpose jamais exactement à la courbe de l'abaque et le décalage n'est pas toujours à mettre sur le compte de l'erreur de mesure. On doit attribuer cette fluctuation au potentiel dynamique, qui a pour effet de diminuer la valeur apparente du potentiel interne moyen, lorsque l'on n'a aucune réflexion forte et qu'une file systématique coupe la sphère d'Ewald sous un angle assez faible. Par conséquent il est bon, dans la superposition de la courbe à l'abaque, de faire en sorte que les points δ soient toujours au dessous de la courbe $a(\beta)$ de l'abaque. La fluctuation de $\Delta\delta$ distance de la courbe $a(\beta)$ à la courbe δ rendra compte de la variation du potentiel dynamique U_{11} dont un calcul à l'ordinateur peut donner l'ordre de valeur.
- le décalage par contraste de phase a un ordre de valeur légèrement plus faible. Il est plutôt à observer sur le diagramme défocalisé car il se manifeste par une légère fluctuation de la frange réfractée du faisceau direct, cette fluctuation ne se retrouvant généralement pas sur la tache diffractée (Pl. II). L'amplitude de cette fluctuation doit donner une idée de l'ordre de valeur du décalage par contraste de phase.

On voit que la présente technique compense dans une large mesure les imperfections du matériel (méconnaissance des véritables conditions de diffraction) et autorise une technique de préparation d'échantillon assez simple comme le clivage et le facettage.

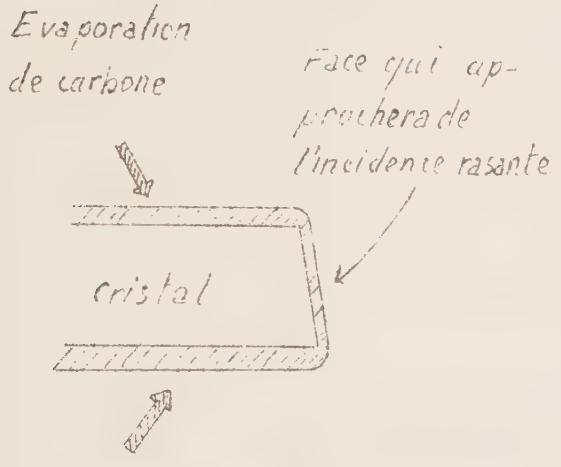
Remarquons enfin que la détermination à postériori de la valeur de A permet d'effectuer des mesures de Ug en prenant les précautions indiquées en III.

IV - 3 - QUELQUES EXEMPLES DE MESURES DU POTENTIEL INTERNE MOYEN PAR LA METHODE LOGARITHMIQUE

Il est nécessaire d'utiliser cette méthode lorsque sont mal connues l'incidence du faisceau sur le prisme, l'ouverture du prisme et les conditions de diffraction (absence de lignes de Kikuchi et de taches sur le diagramme de diffraction.

Rappelons le procédé expérimental.

Un échantillon cristallin ayant la forme d'un parallélépipède assez plat est placé sur la platine goniométrique de telle sorte que l'arête du prisme que l'on veut utiliser se trouve parallèle à l'axe de rotation du prisme à 4 ou 5 degrés près. Si l'échantillon est isolant, une couche de carbone évaporé sur les faces supérieures et inférieures suffit à écouler les charges. Le sens de l'évaporation indiqué sur le schéma ci-contre fait que l'épaisseur sur la face qui sera proche de l'incidence rasante sera toujours faible. Ainsi la précision que nous obtenons avec notre dispositif expérimental, la méthode de correction décrite en II-B-3 sera satisfaisante.



Si l'appareil utilisé permet d'obtenir une meilleure précision que la notre, nous suggérons d'évaporer sur l'échantillon une couche d'or, en déposant sur l'arête, une grille porte-objet à mailles rectangulaires selon le schéma ci-dessous. (Les trous de la grille sont de l'ordre de 40 μ x 300 μ).

./.

Les expériences d'Uyeda (1965) avaient montré que les charges s'écoulent même lorsque ces régions d'une quinzaine de microns ne sont pas recouvertes d'un dépôt conducteur. On peut faire en sorte que la pénombre soit telle que les rectangles recouverts d'or se recoupent lorsque l'on s'éloigne de l'arête. Ce type de dépôt doit permettre d'approcher de très prés l'incidence rasante. On choisit des conditions de microdiffraction convenables (diagrammes focalisés ou sous focalisés) et l'on photographie la tache réfractée pour diverses incidences du faisceau sur le prisme (V.planche 3). Entre chaque prise de vue on fait tourner l'échantillon de 1 à 2 degrés et l'on peut photographier jusqu'à 7 fois la tache centrale sur une même plaque.

En général δ (déviation du faisceau sur la plaque photo) varie entre 3 et 0,5 mm et peut être mesuré sur la photo au moyen d'une lunette de visée avec une précision de l'ordre de 2 centièmes de millimètre. On construit alors la courbe $\delta(\beta)$ sur un papier semi logarithmique de même module que l'abaque $a(\beta)$. Un module de l'ordre de 13 cm est en général suffisant : une variation de 1 % correspond à un déplacement de 0,5mm.

On superpose ensuite par translation les points de la courbe $\delta(\beta)$ aux courbes de l'abaque les plus convenables (plusieurs prismes peuvent intervenir à la fois). On reconnait alors l'ouverture des prismes et l'on mesure la valeur propre soit en appliquant la formule II-3, soit en utilisant le procédé illustré par la figure IV-3. La fluctuation des points expérimentaux autour de la courbe idéale peut fournir des renseignements précieux sur les conditions de diffraction comme on le verra en détail dans le premier exemple traité.

IV-B-1 - MESURE DU P.I.M. DANS LE K Br

a) Conditions expérimentales :

- C'est un matériau de structure cristalline CFC. On aura donc des prismes, soit de 90 soit de 135°

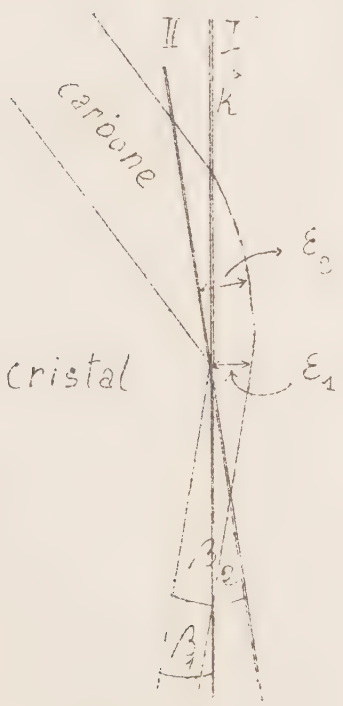
- L'inclinaison de l'axe réciproque 2n.00 qui est parallèle à l'arête est inconnue

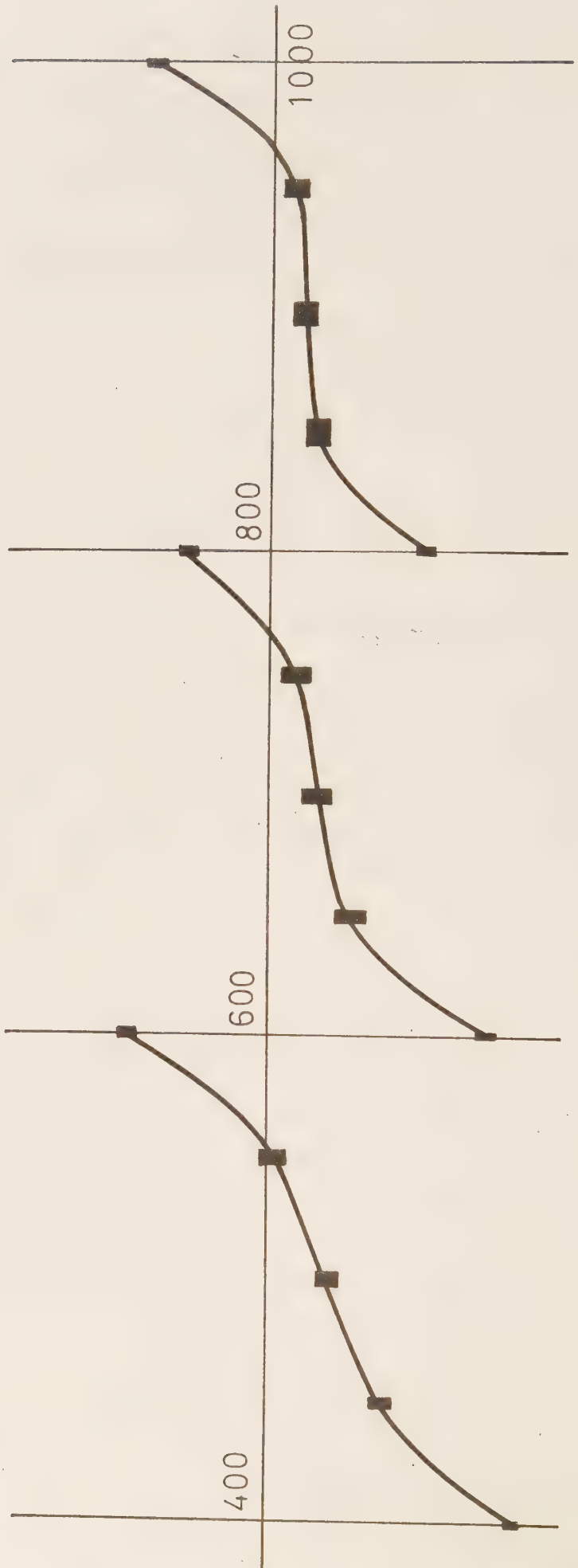
- L'angle β repéré à partir de l'incidence rasante est assez bien connu

- La longueur de diffraction en défocalisée est mesurée à 1,2% près : $\frac{L}{2E} = 0,915.10^{-2}$

b) Effet du contraste de phase dû au dépôt de carbone

On a vu sur la figure II-8 que l'effet de contraste de phase s'accompagne d'une certaine dissymétrie du pic résultant, or dans les 2 cas traités ci-après les pics restent pratiquement symétriques tant que l'on a $\beta \leq 11$ degrés. Donc jusqu'à cette incidence, pas de déplacement du pic par contraste de phase. Mais pour $\beta > 11°$ la dissymétrie apparaît très vite au point que le pic présente un flanc abrupt bordé d'une petite frange, c'est un profil qui s'apparente au dernier représenté Fig.II-8 : il s'agit d'un cas où l'intensité de la tache réfractée dans le carbone est comparable à celle de la tache réfractée dans le cristal. Le présent phénomène s'explique, aisément, la figure ci-contre donnant la forme probable du dépôt de carbone le long de l'arête (on a vu plus haut que l'évaporation est plus forte sur la face 1 du prisme que sur la face 2.)





Forme de la surface de dispersion lorsque l'on passe de la réflexion (400) à (10.0.0) dans le cas des interactions systématiques. La surface des rectangles est proportionnelle a l'intensité.

Figure IV-5

A l'approche de l'incidence rasante, le flux de lumière issu du carbone est assez étroit (on a évalué que ξ , est de l'ordre de 40 Å) de plus, c'est la réfraction dans le second dioptre qui prédomine ($tg\ i_2=20$), ainsi la courbure du premier dioptre cylindrique ne modifie pas dans de grandes proportions l'angle de réfraction. (C'est un phénomène général que l'on observe aisément sur la figure A2 (Annexe I), or il se trouve que la valeur propre mesurée est de 8,5 volts tandis que le P I M du carbone est de 8 volts : les 2 pics se superposent donc et il n'y a pas de décalage.

Ensuite quand β augmente :

- Le flux passant dans le carbone seul est plus important : la tache "carbone" est plus étroite et plus intense;

- L'angle de réfraction dans le dioptre cylindrique n'est plus faible devant l'angle de réfraction dans le dioptre plan : la réfraction dans le carbone est plus forte que dans le cristal : les deux pics se décalent.

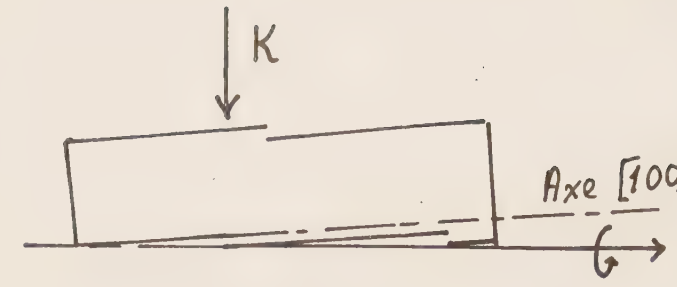
En conclusion le glissement du pic par contraste de phase devient important pour $\beta > 11°$.

LES INTERACTIONS SYSTEMATIQUES

S'il n'y avait aucune réflexion du faisceau sur des plans cristallins la valeur propre mesurée correspondrait au P I M. En fait on ne peut pas éviter de très faibles réflexions accidentelles ou systématiques et la valeur propre mesurée dépend de l'incidence du faisceau sur le cristal il faut donc effectuer une correction.

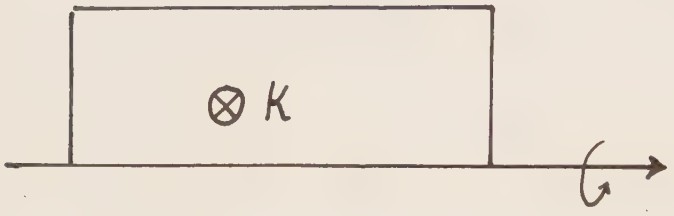
Dans les cristaux cubiques, par exemple l'arête est parallèle à l'axe réciproque [100] et comme cette arête a une direction proche de la normale au faisceau incident les taches (2n.00) sont en conditions d'interaction

./.

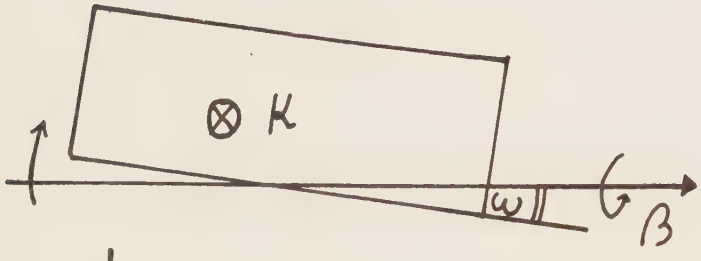


(a)

axe de rotation β

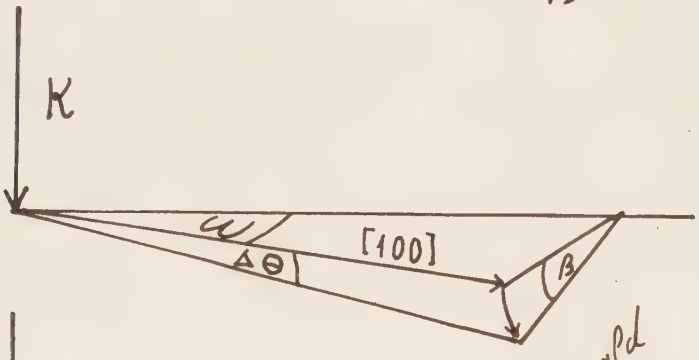


(b)

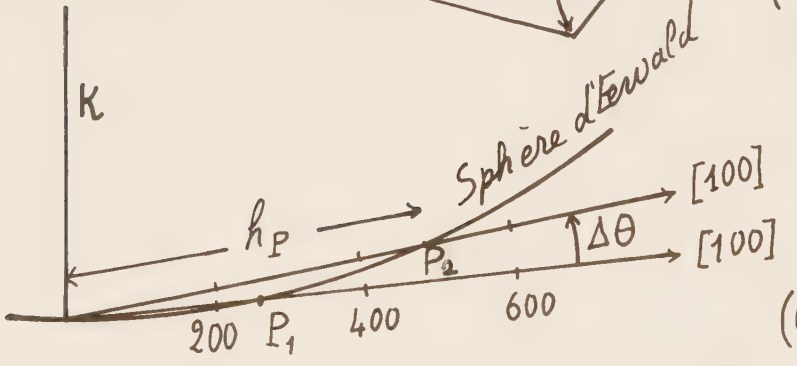


(c)

} Rabattement



(d)



(e)

systématique, ces réflexions même très faibles peuvent modifier la valeur propre de façon appréciable et cette variation peut être évaluée à l'ordinateur.

Dans le cas présent où le cristal est de structure NaCl les interactions accidentelles auront peu de poids car β ne dépassera jamais 20 degrés, or les taches réciproques correspondant à des réflexions qui ne sont plus négligeables : (n 51) et (2n 10.2) sont voisines de la sphère d'Ewald pour β = 11 degrés et les taches (2n 8.2) pour β = 14 degrés.

Dans le cas présent les marches de clivage qui se trouvent à la surface de l'échantillon font que l'arête du prisme n'est pas rigoureusement parallèle (figure a ci-contre et son rabattement b dans le plan du diagramme). Comme on ne connait pas cette inclinaison on a avantage à tourner l'échantillon d'un angle ω dans le plan de référence de la platine gonio (voir rabattement c). Lorsque l'on fera tourner l'échantillon autour de l'axe β du goniomètre, l'inclinaison de la file systématique (2n 00) variera d'un angle:

$$\Delta\theta = \Delta\beta \sin\omega$$

comme le montre la figure (d). Ainsi le point d'intersection P de la sphère d'Ewald avec l'axe systématique [100] parcourera cet axe (figure e).

Or il est possible de calculer à l'ordinateur le profil de la nappe de dispersion en fonction de la position de P sur l'axe systématique par une méthode matricielle et de relever sur un graphique figure IV-5 le profil de la nappe de dispersion la plus intense dans la direction (000). V varie de façon appréciable jusqu'à $h_{(P)}$=(600) après elle ne varie vraiment beaucoup que lorsque P est au voisinage immédiat d'une tache réciproque.

Cette courbe donne donc une idée de l'amplitude de la fluctuation de V lorsque P parcourt l'axe réciproque,

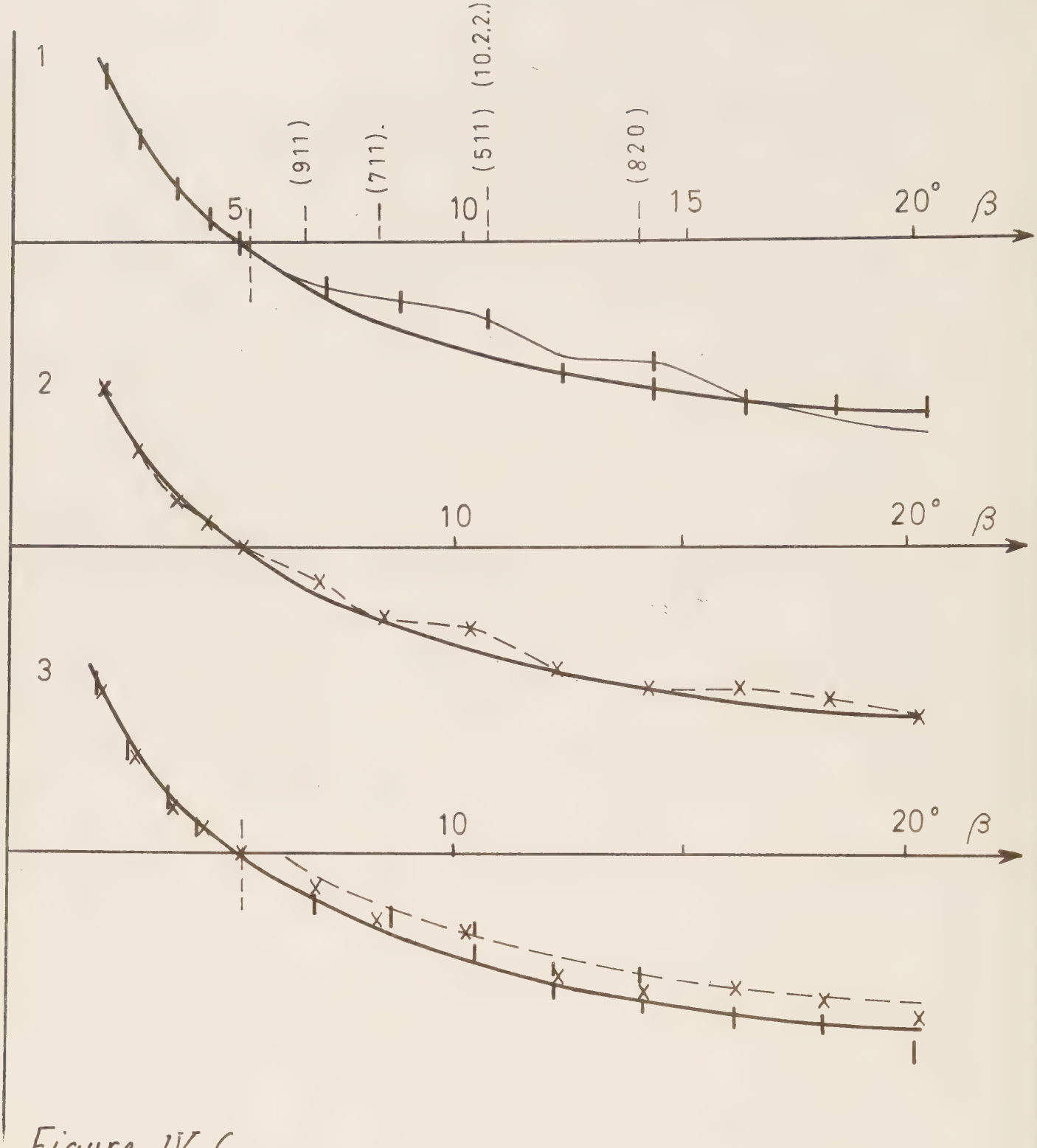


Figure IV-6

Profil des courbes log $\delta(\beta)$ pour KBr pour deux valeurs différentes de ω ($\omega_1 - \omega_2 = 9°$) (v. page précédente). La courbe 3 est la superposition des courbes 1 et 2 en trait plein : courbe de l'abaque $\log\left(\frac{1}{tg\beta} + tg(135° - \beta)\right)$

inversement la valeur expérimentale de cette fluctuation donnera une idée de l'endroit où se trouve P sur l'axe réciproque et alors il suffira de faire

$$V_o = \mathcal{V}_{o(exp)} - \mathcal{V}_{(calcul)}$$

Nous avons fait deux séries de photos de la tache centrale pour deux valeurs différentes de ω .

Pour ω_1 , la projection de l'arête sur l'écran est à peu près parallèle à l'axe de rotation β. ω_2 vaut $\omega_1 + 9°$

Les deux courbes $\delta(\beta)$ correspondant à ces cas sont données sur la figure IV-6(1) et (2). Jusqu'à 5 degrés de l'incidence rasante les deux courbes se superposent bien (graphique 3) à la courbe $\Sigma_{(A=135°)} = a(\beta)$: le prisme a donc une ouverture de 135 degrés.

Pour $\beta > 5$ degrés on observe une fluctuation de la courbe. On a un peu artificiellement relié ces points entre eux car les variations ne sont pas continues, et les points un peu trop espacés. On peut tout de même remarquer une certaine périodicité perturbée toutefois pour $\beta = 14$ degrés (pour cet angle les taches (2n 8.2) sont en position d'interaction accidentelles) et la période de fluctuation $\Delta\beta$ est de 3,8 degrés environ.

Or, on sait que la fluctuation selon θ est de :

$$\Delta\theta = \frac{h(200)}{2K} = \frac{\lambda}{a_{(maille)}} = 0,375°$$

ω_2 doit donc avoir pour valeur :

$$\omega_2 = Arc\ sin\ \frac{0,375}{3,2} = 7°$$

ω_1 doit donc être de l'ordre de -2 degrés et l'on trouve que la période de fluctuation est de l'ordre d'une dizaine de degrés ce qui est assez compatible avec la courbe (1).

Certes il est possible que le phénomène de contraste de phase amplifie ces fluctuations (le profil de la tache réfractée pour les valeurs importantes de β, implique son existence).

./.

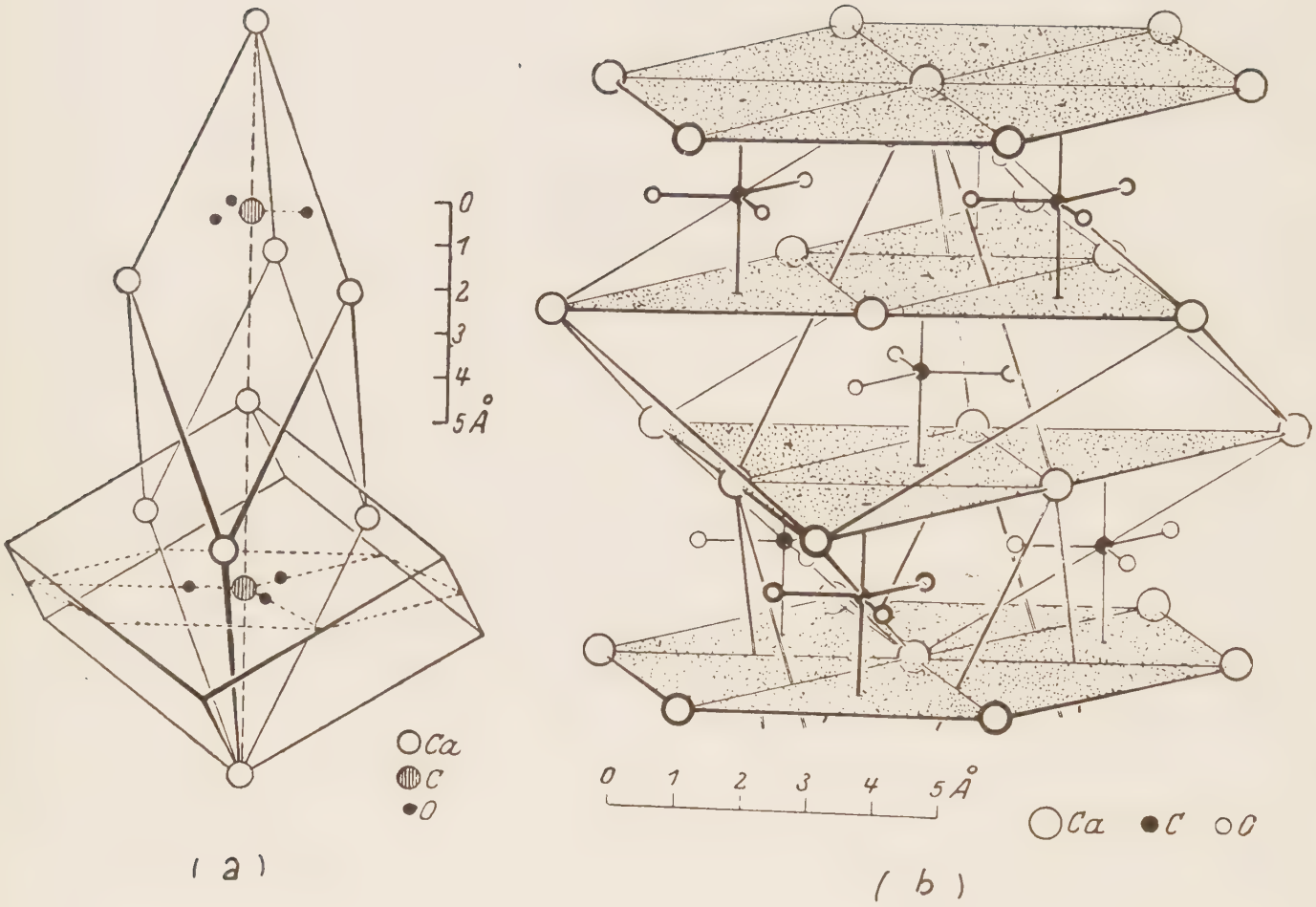


Figure IV-7

Maille de la calcite (d'après Ewald)

a - Maille élémentaire

b - Maille selon le rhomboèdre de clivage

Cependant deux faits sont remarquables :
1) sur la courbe (1) on trouve 2 domaines d'une étendue au moins égale à 4 degrés pour lesquels la valeur propre reste contante. Sur la courbe (2) on trouve aussi un tel domaine pour les petites valeurs de β.

2) Dans les 2 cas un assez grand nombre de points s'appuient sur la courbe $a(\beta)$: les valeurs propres ne doivent donc pas beaucoup varier lorsque l'on passe d'une période $\Delta\,\theta$ à la suivante et la confrontation de ces résultats avec la courbe IV-5 tend à indiquer que pour les petites valeurs de β le point F se trouve au delà de la réflexion (800).

On prendra donc $\Delta V = -0,5$ volts $\pm$ 0,2 = - V'_{moyen}

La superposition de la courbe $\delta(\beta)$ à l'abaque a donné :

$$Vo = 8,5 \text{ volts} \pm 0,5 = V_{p\ Moyen}$$

On obtient donc :

$$\boxed{Vo = 9 \text{ volts} \pm 0,7}$$

IV-B-2 - MESURES SUR LA CALCITE

a) Travail préliminaire

Avant de faire les mesures de Vo et Vh nous avons été conduit à construire sur une projection stéréographique les principaux axes réciproques et de les rapporter aux arêtes intersection des plans de clivage. Il est en effet indispensable de connaître la position des noeuds réciproques par rapport au réseau direct défini par les prismes. Nous avons également dû calculer les pseudopotentiels Vh non fournis par les tables.

Représentation stéréographiques du réseau réciproque

Le réseau cristallin de la calcite peut être représenté selon trois systèmes de coordonnées (Ewald -

./.

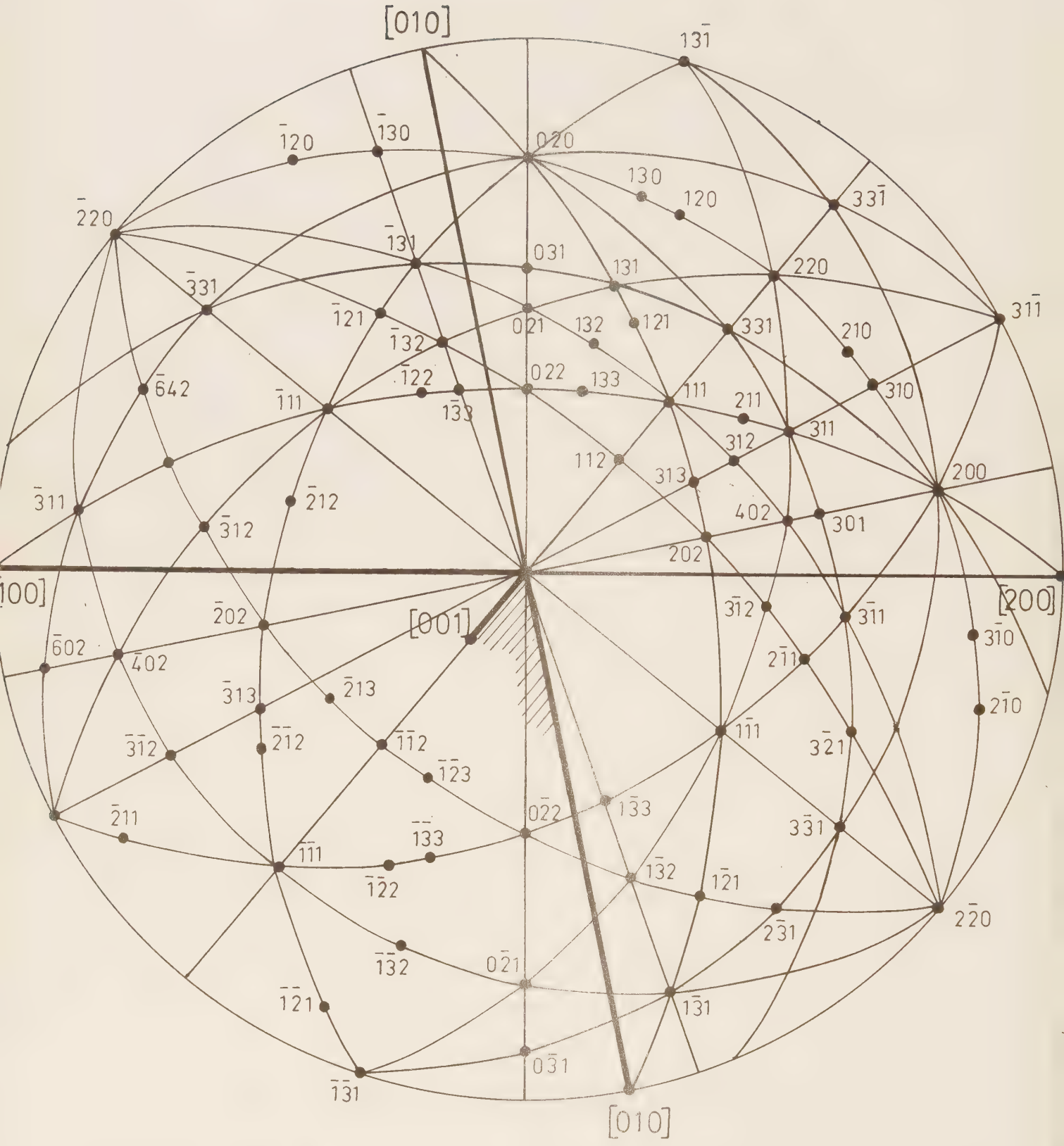


Figure IV-8

Projection stéréographique des plans réticulaires de la calcite

Wyckoff, 1931)

- Un rhomboèdre très allongé représente sur la figure IV-7

$a = 6,361$ Å

$\alpha = 46°,7$

$u = 0,25$ c'est à dire que la distance c - O est de 1,26 Å.

- Un rhomboèdre beaucoup plus aplati qui correspond au rhomboèdre de clivage représenté sur le même dessin = (c'est le système d'axe que nous avons choisi pour indicer notre réseau réciproque). C'est une structure équivalente à un C.F.C. aplati selon une direction 111 ici $a = 6,412$ Å

$\alpha = 101°, 55'$

- Un système hexagonal de maille

$a = 4,989$ Å

$c = 14,062$ Å

La construction IV-8 représente la projection stéréographique des principaux axes réciproques indicés en prenant pour référence le rhomboèdre de clivage ; les plans de clivage ont pour indices (200) et l'on a représenté sur la projection, les arêtes de clivage 100 . Ainsi peut-on, par ce procédé, représenter aisément l'orientation du réseau réciproque par rapport au prisme étudié. On peut en outre prévoir l'indice des réflexions qui apparaîtront lorsque le cristal tournera dans le faisceau incident : en effet le plan d'Ewald peut être représenté par un méridien de l'abaque de Wulff dont les pôles correspondant à l'axe de rotation du cristal. Le passage du méridien sur un point correspond à la réflexion du faisceau sur la famille de plans représentés par ce point.

./.

Calcul des termes Vg

Nous avons appliqué la formule

$$V_g = \frac{e}{4\pi^2 \varepsilon_0 \tau_M g^2} \sum_i (Z_i - f_x^i(g)) \sum_j \exp(2\pi i\, g\, r_{ij})$$

où :

τ_M est le volume de la maille élémentaire.

Z_i le numéro atomique de l'atome i

fi_x le facteur de diffusion atomique pour les rayons x pour C et O on a pris le facteur de diffusion de l'atome neutre, pour Ca celui de l'atome ionisé Ca++

r_{ij} définit la position du j^e atome i dans la maille.

Le facteur de diffusion atomique et la formule du facteur de diffusion géométrique pour le groupe de symétrie C^6_{3v} ont été relevés dans INTERNATIONAL TABLES OF X RAY CRYSTALLOGRAPHY (tome III p.202 et tome I p.470).

On donne dans le tableau suivant la valeurs de Vg par ordre de g croissant. Ces indices sont exprimés dans les trois systèmes de coordonnées, correspondant aux trois mailles suivantes :

R.E. Rhomboèdre élémentaire

H. Hexagonal

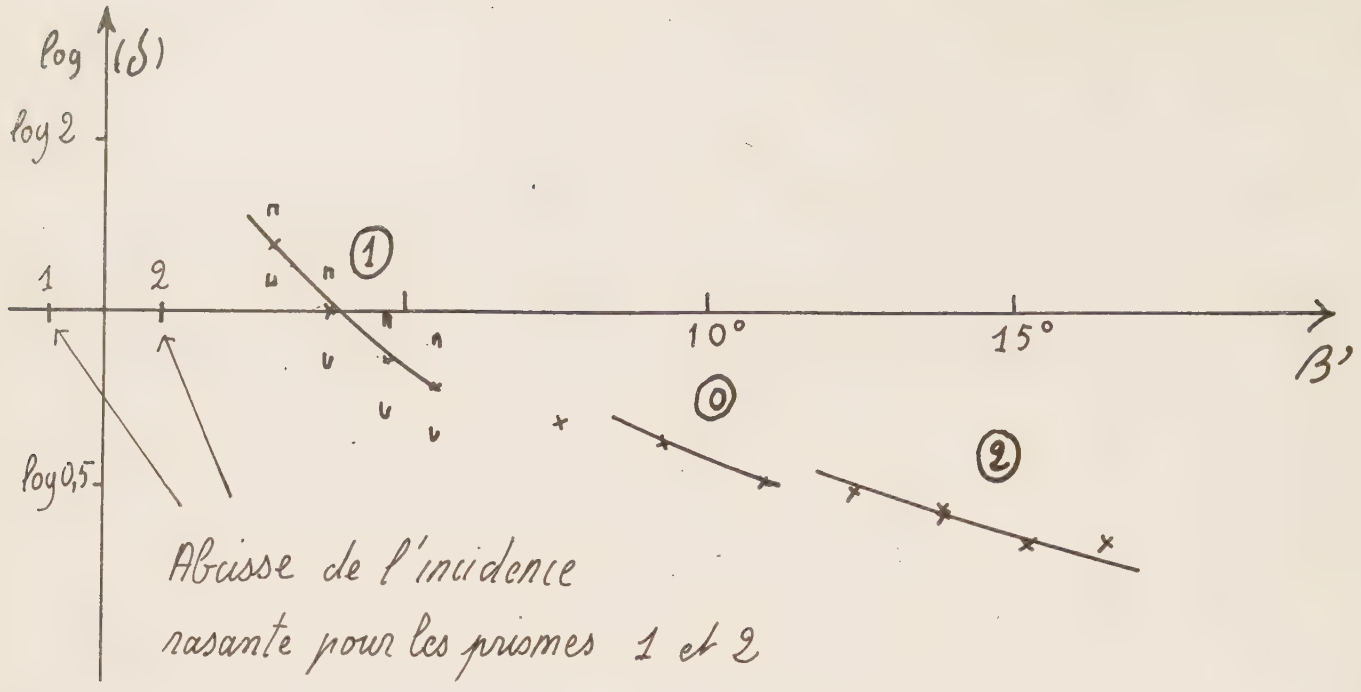
R.C. Rhomboèdre de clivage

Il est à noter que la maille n'est pas centrosymétrique et que les V_g imaginaires purs (indiqués par * dans le tableau) correspondent à des indices qui n'existent pas dans maille R.C.

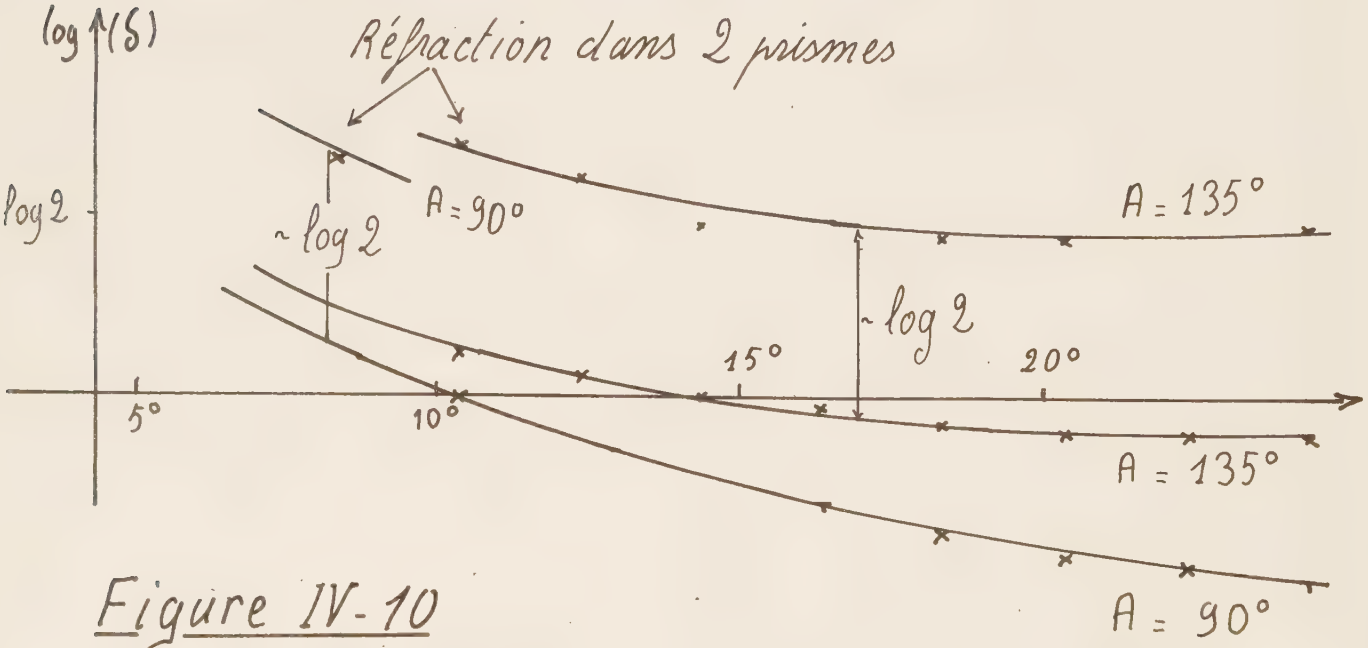
./.

	h k l		d	V_g	V_{2g}	V_{3g}
RE	Hex	R.C.				
011	$\bar{1}02$	$\bar{1}11$	3,854	1,42	1,90	0,16
112	0,$\bar{1}$4	002	3,035	5,49	1,42	
222	006	111	2,844	1,66	3,950	0,65
$\bar{1}01$	110	$\bar{2}02$	2,494	2,65	1,10	0,57
$\bar{4}04$	440	$\bar{8}08$	0,623	1,10		
012	$\bar{1}\bar{1}3$	$(\bar{3}15)/2$	2,284	2,03*	1,17	0,54*
002	022	$\bar{1}\bar{1}3$	2,084	2,15	2,63	0,55
233	$\bar{1}08$	022	1,912	3,64	0,72	
321	116	$31\bar{1}$	1,875	1,96	0,70	
$\bar{1}02$	$\bar{1}\bar{2}1$	$(\bar{5}\bar{1}7)/2$	1,625	1,57*	0,71	0,29*
$\bar{1}12$	$\bar{2}\bar{1}2$	$\bar{3}\bar{1}3$	1,604	1,72	0,54	0,35
433	0.1.10	311	1,587	1,180		
301	314	420	1,525	1,43	0,49	
432	119	-	1,510	1,42*		
302	$\bar{3}25$	(753)/2	1,473	1,38*	0,60	
$\bar{2}11$	$\bar{3}00$	$\bar{4}22$	1,440	2,66	0,45	
241	237	-	1,357	1,26*		
442	0.2.10	$33\bar{1}$	1,339	1,41		
431	128	$42\bar{2}$	1,897	1,53		
543	1.1.42	420	1,230	0,87		
532	2.1.10	$51\bar{1}$	1,180	1,22		
132	$\bar{4}14$	$\bar{4}42$	1,154	2,00	0,31	
542	1.2.11	-	1,125	1,00*		
644	2.0.14	511	1,0615	1,06		
521	318	$60\bar{2}$	1,045	1,73		
655	1.0.16	422	1,035	1,71		
564	$\bar{1}$.2.15	-	1,035	0,89*		
643	2.1.13	-	1,023	0,87*		
552	0.3.12	$4\bar{4}2$	1,012	1,65		

Valeurs de Vg dans la calcite.



Courbe $\log \delta(\beta')$ pour la <u>calcite</u>.
(β' : angle d'inclinaison de la platine gonio)



<u>Figure IV-10</u>

Les courbes $\log \delta(\beta)$ permettent de connaître l'ouverture des prismes et le nombre de prismes traversés par le faisceau réfracté (cas du NaCl) voir chap. IV-A-3

b) CONDITIONS EXPERIMENTALES

Le prisme est recouvert de carbone mais l'effet de contraste de phase jouera très peu les potentiels internes du carbone et de la calcite étant de même ordre de valeur.
- Il n'y a pas de file systématique dense parallèle à l'arête, la valeur propre moyenne mesurée correspondra donc au P.I.M.
- Le cristal avait la position suivante sur le dispositif goniométrique :

Avantage du montage :

Pas d'effet de distorsion sur la mesure des valeurs propres sur les taches diffractées; en effet tg i_2 est petit (voir chapitre III-B-4). Nous avons obtenu les réflexions $(2\bar{2}0)$ et $(31\bar{1})$ voir projection stéréo.

Défauts de l'expérience :

En raison de la faible amplitude de rotation du gonio, nous avons dû faire nos mesures sur le petit prisme 75°. Nous avons donc perdu de la précision.
- L'échantillon était composé d'une mosaïque de cristaux très légèrement décalés, cela a abaissé la précision des mesures du P.I.M. voir photo I-d et courbe ci-contre.
- La longueur de diffraction est mesurée à 1,5% près
L = 1550 mm et $\frac{L}{2E}$ a 1,8% près

MESURE DE V_o

On a trouvé après plusieurs mesures :

$$\boxed{V_o = 9,5 \text{ volts} \pm 0,7}$$

./.

Un enregistrement microsensitométrique a permis de mesurer approximativement le terme Vi_o en mesurant la largeur $\Delta \ell$ du pic à mi-hauteur et en appliquant la relation :

$$\frac{2 V_o'}{V_o} = \frac{\Delta \ell}{\delta}$$

$$\boxed{V_o^i = 1{,}75 \text{ volts} \pm 0{,}25}$$

IV-C - MESURES DE QUELQUES VALEURS DE V_g

Nous avons montré en IIIème partie que pour mesurer V_g par réfraction, il était nécessaire :

1) d'effectuer des corrections sur la mesure de la différence de valeurs propres
   - en fonction de l'incidence du faisceau sur la seconde face du prisme lorsque g n'est pas parallèle à l'arête (III-B-3).
   - en fonction des interférences entre les deux taches du doublet réfracté lorsqu'elles se recoupent (annexe V)
2) de connaître avec précision l'incidence du faisceau sur le réseau cristallin (III-C-1) : la mesure de V_g la plus précise ayant lieu lorsque la réflexion g est dans les conditions de Bragg et lorsqu'aucune interaction accidentelle n'est intense. Décrivons succinctement comment nous déterminons les conditions de diffraction.

IV-C-1 - REPERAGE DES CONDITIONS DE DIFFRACTION

Habituellement on se sert des lignes de Kikuchi pour mesurer le paramètre d'erreur. Ici ce n'est pas possible car les lignes g disparaissent à l'approche des conditions de Bragg.

En effet les intensités du faisceau transmis et du seul faisceau diffracté intense sont du même ordre de grandeur, car on n'a pas à tenir compte du battement d'ondes qui sont séparées à la sortie du prisme (voir annexe A-5). Il convient alors de considérer deux diagrammes de Kikuchi centrés sur les taches o et g. Or, les familles de ligne g de ces deux diagrammes se superposent, les lignes d'intensités positives d'un diagramme correspondent aux lignes d'intensités négatives de l'autre : lorsque les intensités I_o et I_g sont égales, celles des fonds continus des deux diagrammes le sont aussi et les intensités des lignes se compensent comme on le voit sur le schéma suivant

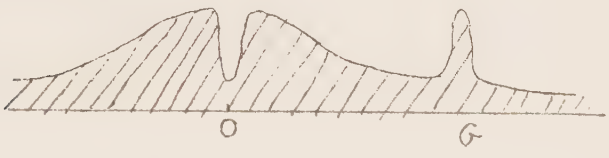


Diagramme de Kikuchi centré sur O

centré sur G

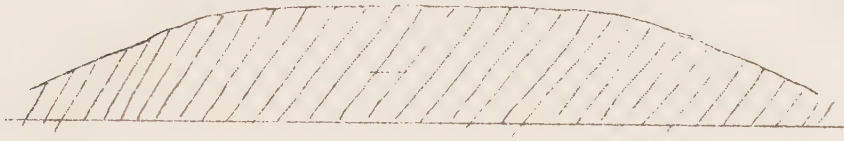


Diagramme résultant

De fait, on observe couramment la disparition des lignes de Kikuchi correspondant à la réflexion proche des conditions de Bragg et ne subsistent que les lignes correspondant aux réflexions faibles. La planche V illustre ce phénomène : sur la photo, on observe deux systèmes de lignes de Kikuchi autour des taches (200) et (100) qui sont symétriques par rapport à la médiatrice du vecteur réciproque (200). On est donc pratiquement dans les conditions de Bragg pour cette réflexion, or le couple de lignes d'indice (200) est indivisible. Au contraire, sur la planche VI on voit fort bien la paire de lignes d'indice (400), les conditions de Bragg n'étant pas remplies,

./.

pour cette réflexion. Il n'est donc pas possible de mesurer des petites valeurs de W avec des lignes de Kikuchi dans nos conditions expérimentales. Mais nous pouvons accéder à ce paramètre par la microdensitométrie, en effet on peut comparer sur les diagrammes défocalisés les intensités des deux champs d'ondes principaux dans la direction transmise et diffractée. Nous nous servirons toutefois des lignes de Kikuchi correspondant aux interactions accidentelles pour déterminer l'orientation complète du cristal.

Pour tirer au mieux profit des intensités ainsi mesurées on procèdera de la façon suivante :

1) On calculera selon la méthode indiquée en annexe IV, les valeurs propres γ_i et les intensités des différents champs d'ondes ${}^{i}I_g$ dans chaque direction de diffraction g en se servant des valeurs théoriques de V_g, et en faisant balayer à la projection du point d'onde sur le plan réciproque, la région dans laquelle sa présence est plausible.

Si les conditions de mesures sont acceptables seules les intensités ${}^{1}I_o$, ${}^{2}I_o$, ${}^{1}I_g$, ${}^{2}I_g$ ont une valeur importante. On porte donc sur une courbe en fonction W et selon les conditions expérimentales, les quantités :

$$\frac{{}^{1}I_g + {}^{2}I_g}{I_{Total}} \quad \text{et} \quad \gamma_1 - \gamma_2$$

ou bien

$$\frac{{}^{1}I_g}{{}^{1}I_o} \; , \; \frac{{}^{2}I_g}{{}^{2}I_o} \quad \text{et} \quad \gamma_1 - \gamma_2$$

On trouvera un peu plus loin des exemples de ces courbes figures IV-13 et IV-14. Les valeurs expérimentales de ${}^{i}I_g / {}^{i}I_o$ permettant de préciser l'incidence du faisceau. Elle est définie par l'abscisse de la courbe pour laquelle les valeurs ${}^{i}I_g / {}^{i}I_o$ expérimentales et calculées sont égales. On lit à la même abscisse la valeur de $\gamma_1 - \gamma_2$

./.

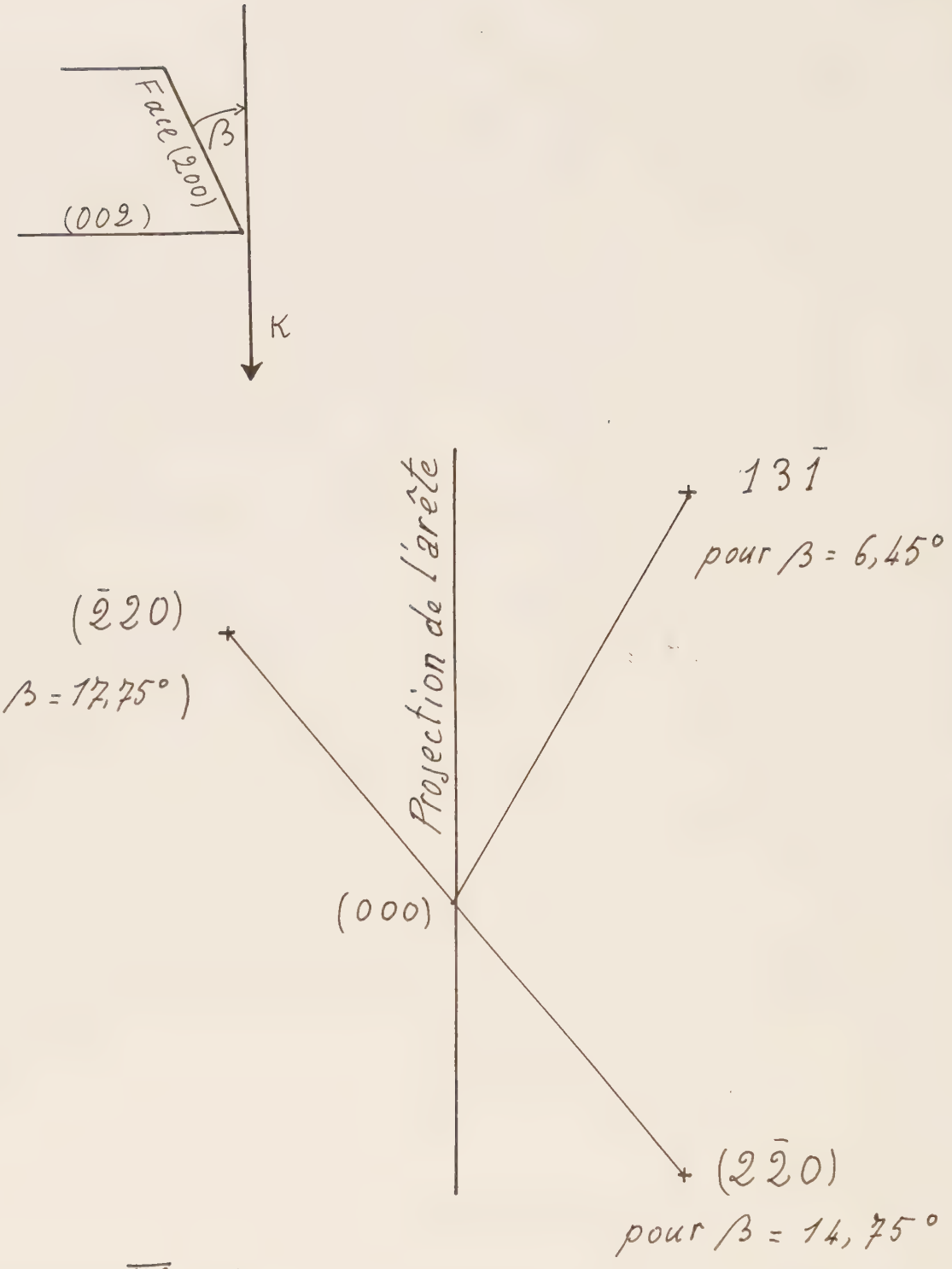

Face (200)
β
(002)
K
Projection de l'arête
(000)
$13\bar{1}$
pour β = 6,45°
$(\bar{2}20)$
(pour β = 17,75°)
$(2\bar{2}0)$
pour β = 14,75°

Figure IV-11

théorique correspondant au V expérimental. On obtient alors V_g par la relation (voir chap. III-C)

$$\underset{\text{Mesuré}}{\frac{V_1 - V_2}{2}} - \underset{\text{Recherché}}{V_g} = \underset{\text{Calculé}}{\frac{V_1 - V_2}{2}} - \underset{\text{Hypothèse}}{V_g}$$

Si la valeur de V_g trouvée est notablement différente de la valeur prise pour le calcul, on peut recommencer ce calcul avec la nouvelle valeur de V_g, par approximations successives.

IV-C-2 - MESURE DE $V_{\bar{2}20}$ (MAILLE R.C.) DE LA CALCITE

a) Orientation du cristal

On peut indicer les taches observées sur les diagrammes en se rapportant à la projection stéréographique du réseau de la calcite dessinée sur la figure IV-8. Le cristal avait la position schématisée sur la figure IV-11, et lors de sa rotation sont apparues successivement les réflexions

$(\bar{2}20)$ $(2\bar{2}0)$ et $(13\bar{1})$ (indices du Rhomboèdre de clivage)

La comparaison des angles β auxquels on a obtenu ces réflexions a permis de conclure que les réflexions $(\bar{2}20)$ et $(2\bar{2}0)$ ne correspondaient pas au même cristal, que l'arête du prisme est suffisamment inclinée, de 2,3 degrés environ, pour que les deux réflexions $(2\bar{2}0)$ et $(13\bar{1})$ apparaissent séparément. Ces deux réflexions ne sont donc pas en conditions d'interactions accidentelles.

On a aussi observé que les réflexions $(\bar{2}20)$ et $(31\bar{1})$ correspondent à une région où le cristal est courbé, en effet l'écartement des nappes de dispersion n'est pas constant quelle que soit la région du prisme considérée (voir planche I-d et planche VII). On est sûr qu'il s'agit bien d'un cristal courbé car les variations des

./.

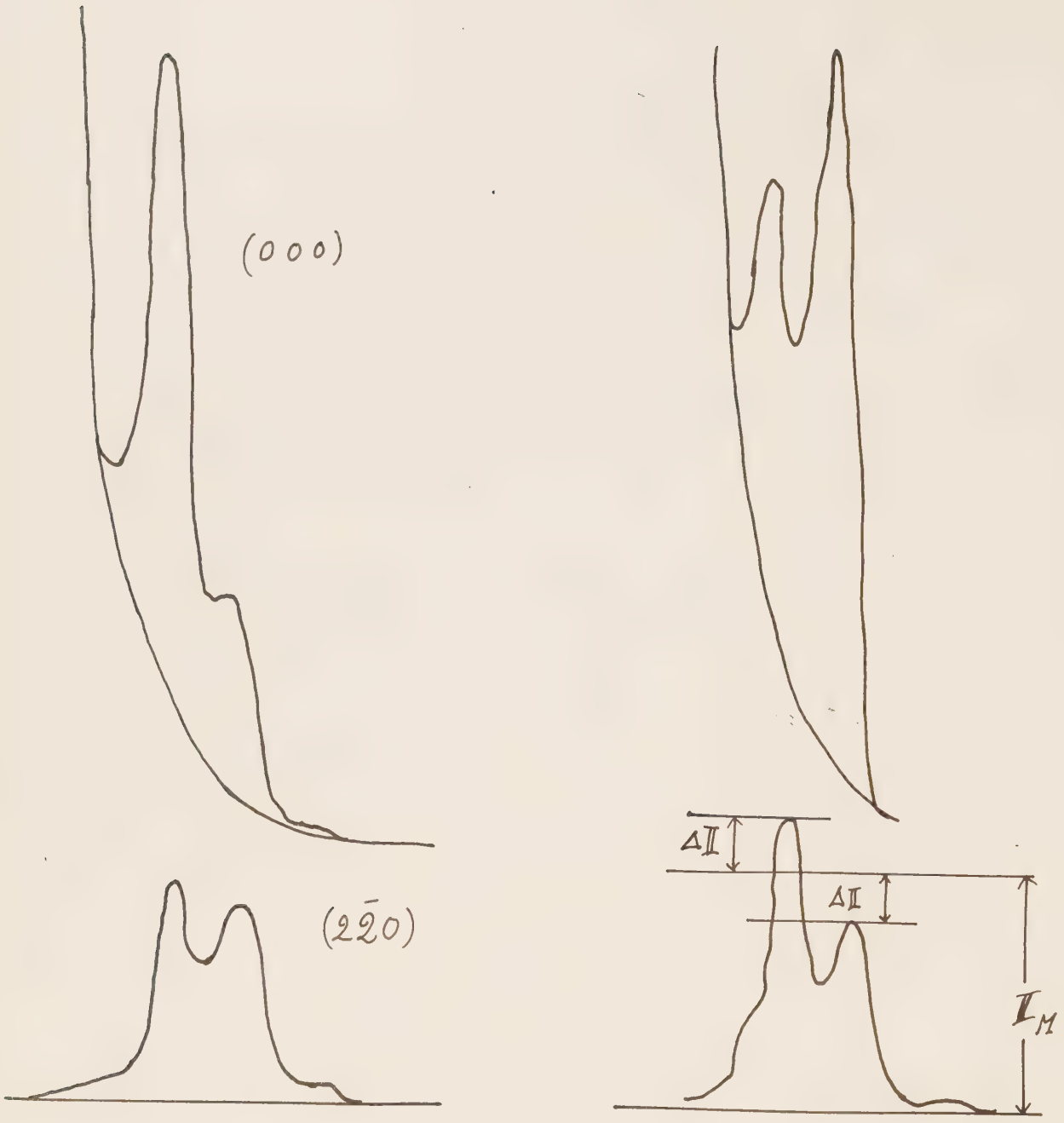


Figure IV-12

Exemples d'enregistrements microdensitométriques sur les taches (000) et (2$\bar{2}$0) pour des valeurs de W de signe contraire. La différence de hauteur des pics du doublet diffracté permet d'évaluer sommairement l'absorption anormale.

intensités et des valeurs propres sont compatibles lorsque l'on fait les enregistrements en plusieurs points des taches défocalisées.

b) Distorsion

i_2 reste toujours faible, il n'y aura donc pas de distorsion dans la mesure de $\gamma_1 - \gamma_2$. Par contre il n'est plus évident que l'abscisse des intersections de la normale à la face d'entrée avec les deux nappes de dispersion ont des projections confondues sur le plan réciproque, comme on en fait l'hypothèse dans les calculs d'intensités et de valeurs propres. On montre toutefois à partir du critère défini en III-C-1 (relation III-15) que la présente approximation est acceptable pour le calcul des différences entre les valeurs propres lorsque on a la réflexion du type $(2\bar{2}0)$ mais on introduit alors sur le calcul de la quantité I_g/I_{total} une erreur de l'ordre de 6 %.

Par contre l'approximation ne se justifie pas pour la réflexion $(13\bar{1})$ nous ne donnerons donc pas les résultats relatifs à ce cas de diffraction.

Mesure de V_{220} (R.C.)

Les taches défocalisées des diagrammes fournissent une image d'ombre du prisme. On a donc pu faire sur les taches défocalisées directes et diffractées des enregistrements microdensitométriques qui correspondent à des régions de l'échantillon qui paraissent intéressantes. On observe sur la figure IV-12 que les deux pics se recoupent et on est obligé de mesurer l'intensité intégrée du doublet. Ce procédé est génant car pour comparer avec profit l'intensité théorique et l'intensité expérimentale, il faudrait pouvoir tenir compte de l'absorption anormale, ce que nous n'avons pu faire, ne connaissant pas la partie imaginaire des V_g.

./.

Toutefois, on peut mesurer assez facilement la modification de la quantité $\frac{I_g}{I_o + I_g}$ par une absorption anormale peu importante. Le calcul machine montre en effet que pour la calcite, où les V_h sont petits, les intensités diffractées dans la direction g sont les mêmes pour les deux champs d'ondes, comme le laissent prévoir les conditions aux limites sur la face d'entrée de l'échantillon pour la théorie à 2 faisceaux sans absorption. Or on voit sur les enregistrements IV-12 que le coefficient d'absorption est peu différent pour les deux champs d'ondes, puisque les pics du doublet ont une hauteur peu différente. Dans ces conditions, la relation II-5 bis conduit à écrire que lorsqu'on passe du cas sans absorption au cas avec absorption anormale la variation relative des intensités des champs d'ondes i sont fournies par les relations simples

$$\frac{\Delta' I_o}{' I_o} = \frac{\Delta' I_g}{' I_g} = \frac{1}{2} \frac{\Delta I_M}{I_M}$$

Où I_M est proportionnel à la hauteur moyenne des deux pics du doublet diffracté g (voir fig.IV-12). Avec ces formules simples on peut facilement passer des intensités expérimentales à celles que l'on aurait sans absorption anormale, néanmoins le calcul n'est possible que dans la mesure où l'on est sûr qu'il n'existe aucune interaction accidentelle, car alors l'hypothèse ne serait plus valable dans le cas sans absorption. Quoiqu'il en soit, nous avons évalué que l'erreur sur le rapport $\frac{I_g}{I_o + I_g}$ due aux hypothèses grossières que nous faisons ici pour évaluer l'absorption anormale doit rester inférieure à 6 %. Remarquant d'autre part que le signe de l'erreur dépend du signe de W, cette erreur disparaitra si l'on fait la moyenne de mesures pour laquelle la moyenne des W est nulle.

./.

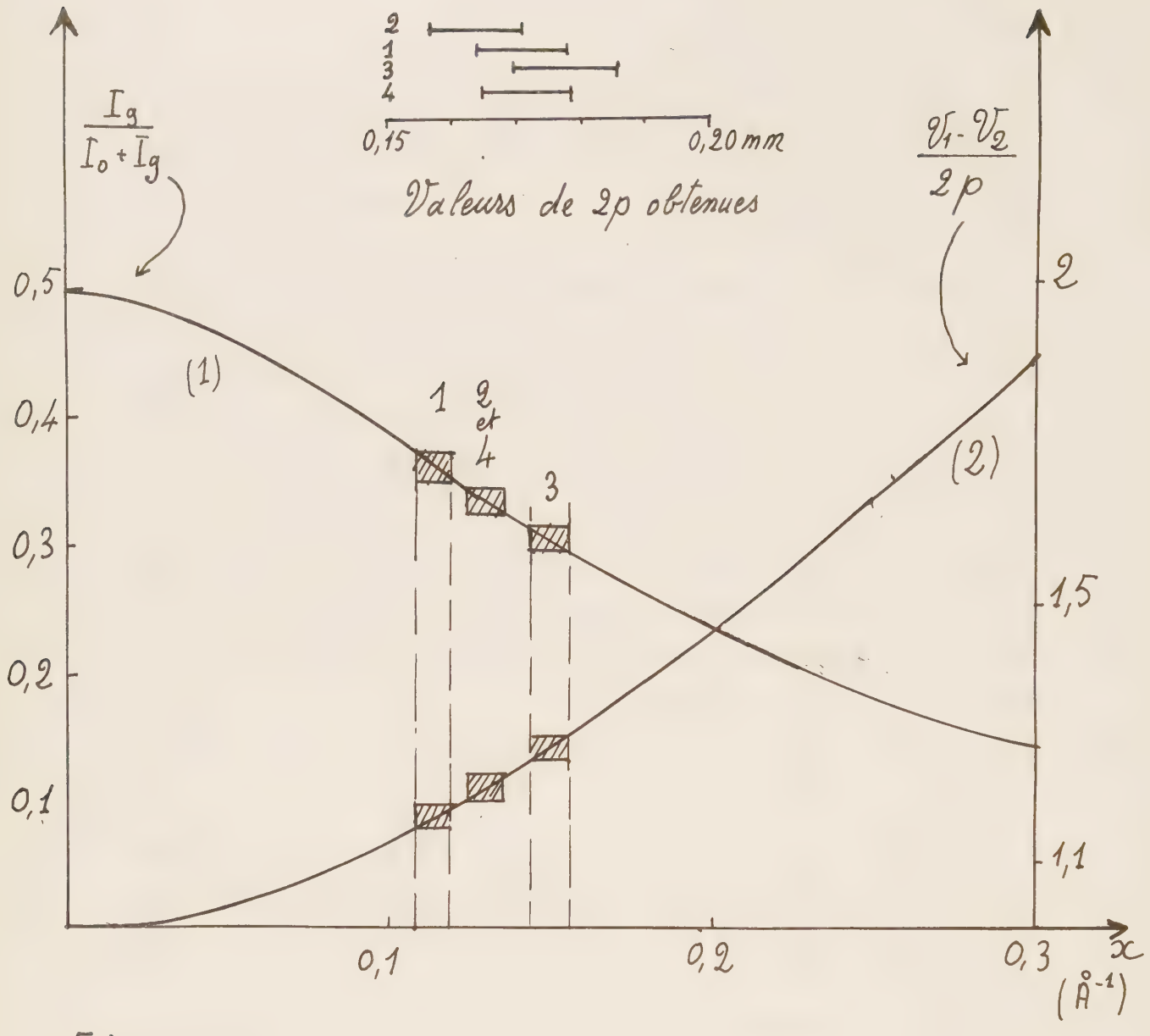


Figure IV-13

Détermination de 2p à partir des courbes $\frac{I_g}{I_0 + I_g} = f_1(x)$: (1) et $\frac{V_1 - V_2}{2p} = f_2(x)$: (2). La courbe (1) permet de déterminer x à partir des valeurs $\frac{I_g}{I_0 + I_g}$ expérimentales. A cette abcisse on lit sur (2) la quantité $\frac{V_1 - V_2}{2p}$ d'où l'on tire 2p puisque $V_1 - V_2$ est fourni par l'expérience

REMARQUES :

Pour mesurer I_o il est nécessaire de déterminer le profil du fond continu. Ici son tracé n'est pas trop arbitraire puisque les pics réfractés se déplacent en fonction de la région du prisme étudiée (Planche VI) l'échantillon n'étant pas parfaitement monocristallin. Les divers enregistrements microdensitométriques dévoilent donc les régions différentes du fond continu que l'on peut ainsi reconstituer.

TRAVAIL PREPARATOIRE

On a calculé en théorie à 4 faisceaux les valeurs propres et les intensités lorsque le point d'intersection de la sphère d'Ewald avec l'axe systématique balaie un domaine de 0,3 g autour du noeud réciproque ($2\bar{2}0$) (l'abscisse x de ce point sera rapporté à cette tache).

On a extrait de ce calcul les quantités :

$\frac{\gamma_1 - \gamma_2}{2p}$ et $\frac{I_g}{I_o + I_g}$ que l'on a reportées en fonction de x sur la courbe IV-13, on a aussi relevé la quantité

$$\frac{P}{V_g} = 0{,}949$$

REMARQUE : A l'occasion de ce calcul on a observé que la théorie à deux faisceaux était fort bien vérifiée en ce qui concerne les points suivants :

1) Les quantités ${}^1I_g$ et ${}^2I_g$ sont pratiquement égales même pour les plus grandes valeurs de W (W = 1,5)
2) Les intensités des deux champs d'ondes les plus excités sur les directions o et g approchent de 100% de l'intensité totale, pour $W \leq 1{,}5$
3) La quantité $\frac{I_g}{I_o + I_g}\left(\# {}^1I_g + {}^2I_g\right)$ suit assez bien la loi de la théorie à deux faisceaux

$$I_g = \frac{1}{2(1+W^2)}$$

./.

4) La quantité $\nu_1 - \nu_2$ ne dépend pas du signe de W et suit assez bien la loi

$$\nu_1 - \nu_2 = 2p \times \sqrt{1+W^2}$$

La théorie de Bethe est donc convenable dans le cas présent.

EXPLOITATION DES PHOTOGRAPHIES

En plusieurs points de la zone de l'échantillon sélectionnée sur un diagramme défocalisé on a effectué des enregistrements microdensitométriques qui nous ont donné la mesure de $\nu_1 - \nu_2$ (en mm) et la quantité $\frac{I_g}{I_o + I_g}$
Ces valeurs sont reportées sur le tableau suivant :
La courbe IV-13 permet alors de relever les quantités $\frac{\nu_1 - \nu_2}{2p}$ et d'en déduire la valeur expérimentale de 2p
On calcule alors Vg en faisant

$$V_g(\text{volts}) = \frac{2p(\text{mm})}{0,949} \times \frac{2E}{L} \times \frac{1}{a} \quad (a = \text{tg } i_1 + \text{tg } i_2)$$

Référ.	$\frac{I_g}{I_o + I_g}$	δ (=V_1-V_2 en $\frac{mm}{100}$)	$\frac{V_1-V_2}{2p}$	2p (en $\frac{mm}{100}$)
220	2 0,33	20 ± 0,6	1,22 ± 0,02	16,4 ± 0,7
	1 0,36	20	1,17 ± 0,015	17,1
	3 0,30	23	1,275± 0,02	17,8
	4 0,33	21	1,22 0,02	17,2
220	1 0,16	30,6 ± 0,6	1,7 ± 0,01	17,5 ± 2
	2 0,356	19,6	1,17 0,015	16,75± 0,7

Après avoir réduit 2p de 10 % pour tenir compte des effets d'interférences entre les pics qui sont ici très rapprochés, voir annexe V, on a trouvé

$$V_h = 2,08 \pm 0,14 \text{ V}$$

Le résultat correspond à deux boucles d'approximation. Le résultat intermédiaire correspondait à 2,04 volts. La convergence est donc très satisfaisante.

On note que la valeur de V_g trouvée est notablement différente de celle que nous avions calculé V = 2,65 volts. Cet écart peut provenir des hypothèses que nous avions faites sur la charge des ions O et C et qui ont pu causer une erreur importante sur les termes de Fourier de bas indice du potentiel cristallin.

IV-C-3 - MESURE DE $V_{(200)}$ POUR LE Ni O

a) Calcul des V_g

On a calculé V_g en appliquant la formule

$$V_g = \frac{e}{4\pi^2 \varepsilon_0 \tau_c g^2} \sum_j (Z_j - f_j(g)) \exp 2\pi i \vec{g} \vec{R}_j$$

ou τ_c est le volume de la maille CFC d'arête 4,177 Å
Z_j le numéro atomique de l'atome se trouvant à la position définie par le vecteur R_j, dans la maille.
f_j (g) est le facteur de diffusion atomique des rayons X pour les mêmes atomes, lesquels sont supposés deux fois ionisés : O^{--} Ni^{++}. Les f_j (g) ont été pris dans les tables internationales tome III.

TABLEAU DES VALEURS DE V_g

hkl	V_g	V_{2g}	V_{3g}	V_{4g}
111	5,52	6,64	1,86	2,42
200	11,15	5,58	3,02	
220	8,18	3,39	1,70	
311	2,95	2,61		
331	2,28	1,60		
420	4,80			
422	4,19			
442	3,08			
511	1,86			
531	1,57			
533	1,35			
620	2,83			
640	2,26			
642	2,13			

b) Conditions expérimentales

Orientations du cristal et conditions de diffraction

L'arête des prismes est un axe [100] du cristal. Elle est à quelques degrés près parallèle à l'axe de rotation du porte échantillon. Le schéma suivant indique comment est disposé le cristal. L'angle du prisme n'est connu à postériori qu'après usage de l'abaque logarithmique.

Pour des valeurs de β_2 allant de 6 à 16 degrés on a fait des diagrammes de diffraction tantôt focalisés pour observer les lignes de Kikuchi permettant de reconstituer après coup l'orientation du cristal (voir planches V et VI) tantôt défocalisés pour mesurer intensités et valeurs propres.

./.

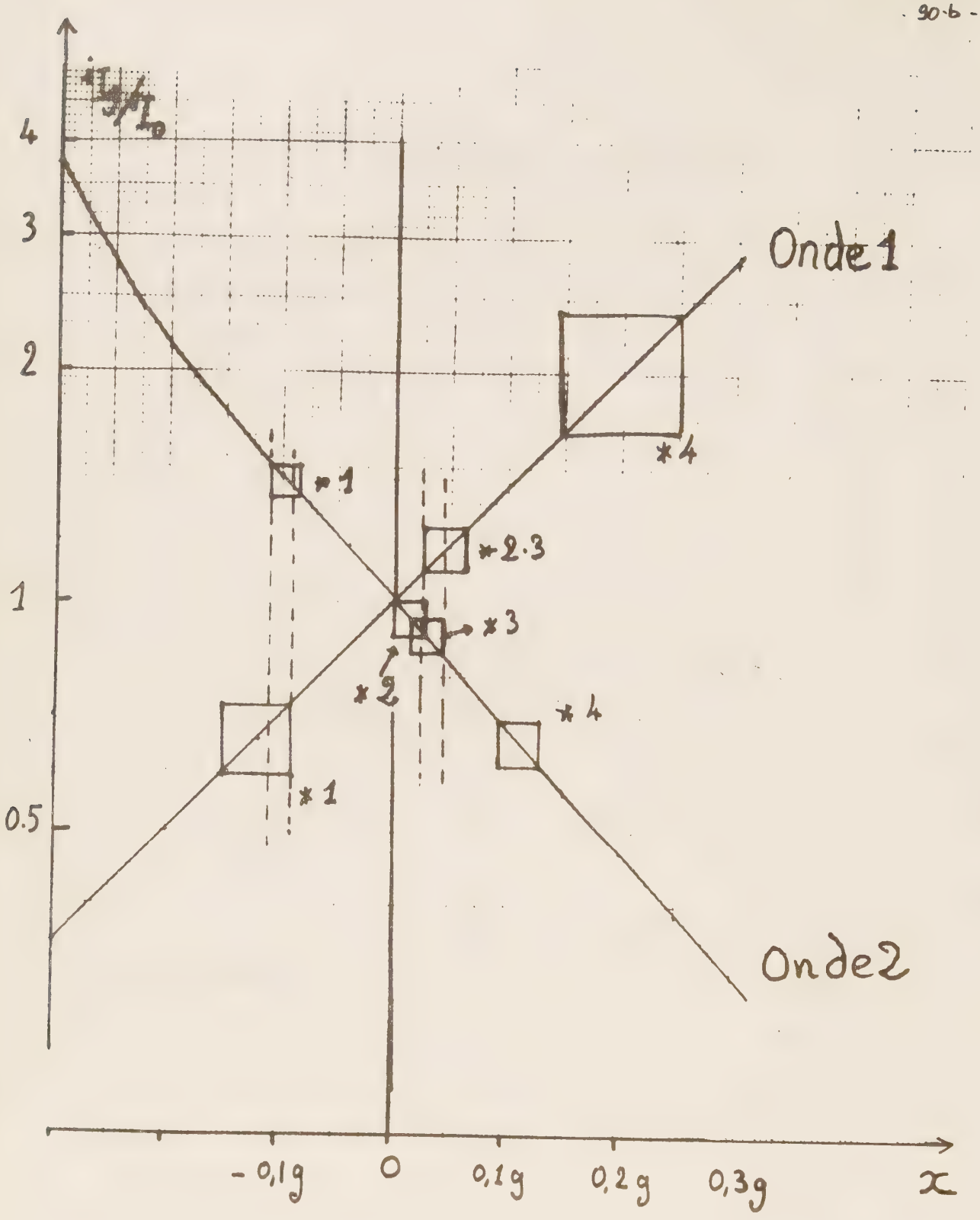
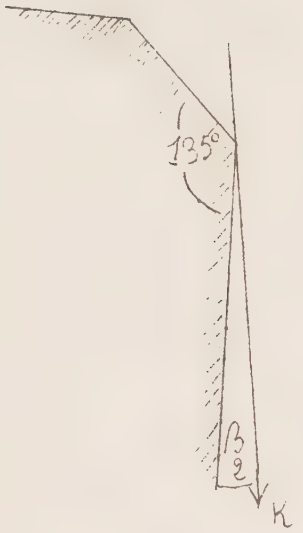


Figure IV-14 Courbe des quantités I_g/I_0 pour les ondes $i = 1$ et 2 en fonction de l'abscisse de l'intersection de la sphère d'Ewald avec l'axe systématique, référée au noeud réciproque G. L'erreur expérimentale (ordonnées) permet d'obtenir l'erreur sur x



Notons que tgi_1, reste de l'ordre de 1 et que la direction de réflexion (200) est parallèle à l'arête, on n'aura donc pas de distorsion dans la mesure des valeurs propres correspondant aux champs d'ondes très excitées, même s'il y a des interactions accidentelles, de plus on pourra comparer les intensités à celles que l'on calcule en admettant que l'incidence est normale sur la face d'entrée.

Conditions d'interférences entre les faisceaux

Il n'est pas nécessaire d'évaporer du carbone sur le cristal pour éliminer les charges, mais il est possible qu'une légère contamination en cours d'expérience ~~mixt~~ un peu faussé la détermination du fond continu sur le faisceau transmis, et ainsi introduit une erreur sur les mesures de ^2Io.(intensité du pic 2) qui se superpose à la tache transmise par cette couche de carbone.

Les deux pics correspondant aux valeurs propres 1 et 2 ne se chevauchent pratiquement pas. Il n'y a donc pas de distorsion dans la mesure de $\gamma_1 - \gamma_2$ par interférence (Annexe V).

On peut mesurer les composants les plus intenses du vecteur propre i puisque l'on peut comparer les intensités du champ d'ondes i sur le faisceau direct et certains faisceaux diffractés. Bien entendu, les quantités I_g/I_o ne dépendent pas de l'absorption anormale, chaque composante du champ d'onde étant absorbée de la même façon.

La largeur des pics a mi-hauteur permet de mesurer la partie imaginaire des valeurs propres.

./.

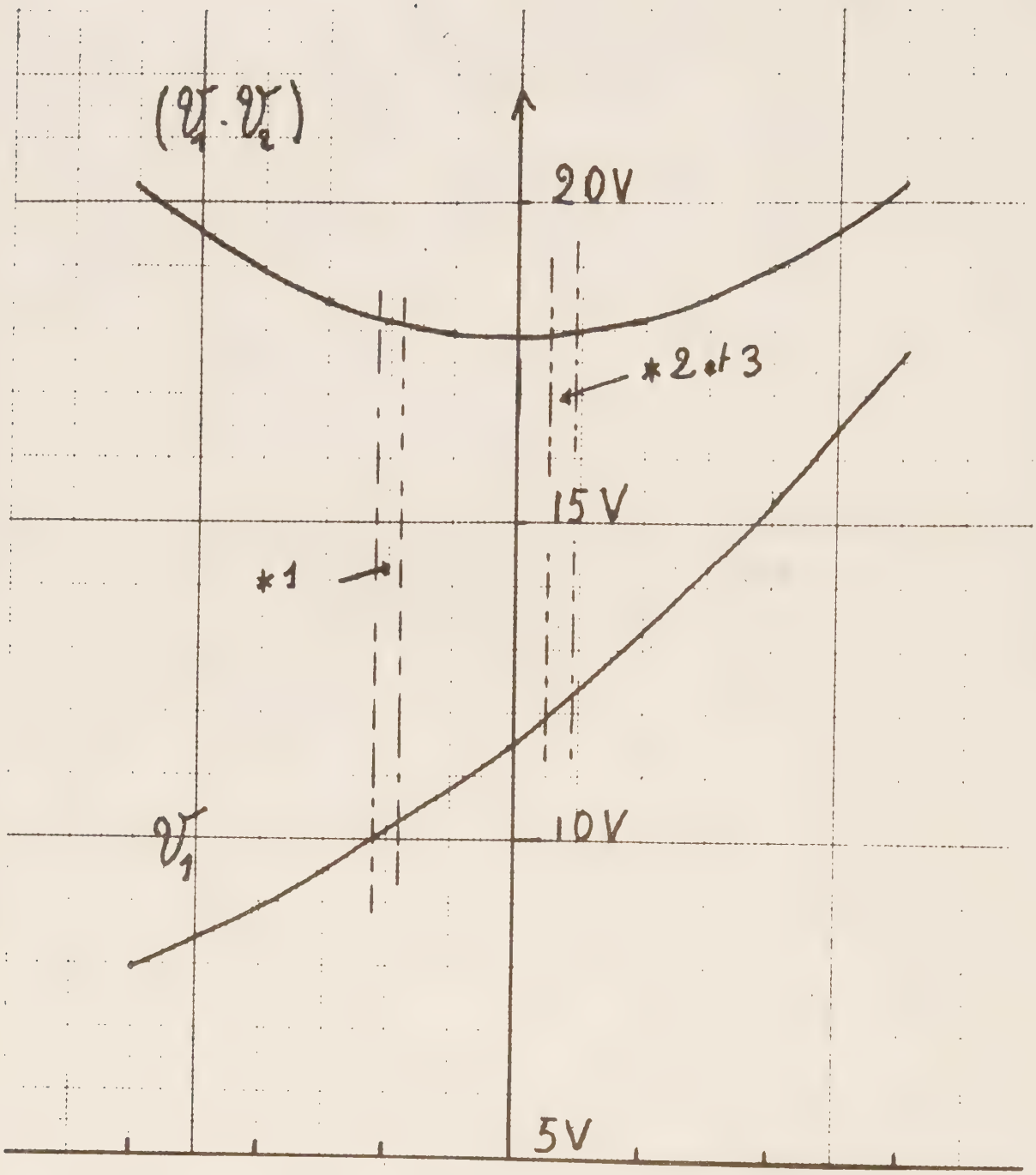


Figure IV-14bis Courbe des quantités $V_1 - V_2$ et V_1 calculées en fonction de x dans le cas des interactions systématiques. On a reporté en pointillé les conditions d'incidence définies sur la figure précédente

c) Exploitation des résultats

On a calculé dans le cas systématique les intensités et les valeurs propres lorsque l'intersection de la sphère d'Ewald avec l'axe systématique s'écarte d'une distance x de la tache (200), et on a reporté en fonction de x les quantités ${}^1I_g/I_o$ et ${}^2I_g/I_o$ sur le graphique IV.14 et sur IV-14 bis $\gamma_1 - \gamma_2$ et γ_1

- On a mesuré ensuite les valeurs propres et les différences de valeurs propres pour des incidences allant de 6 à 16 degrés. Les résultats sont portés sur la figure IV-15.

- On a mesuré par microdensitométrie les intensités intégrées ${}^1I_o$ et ${}^2I_o$, ${}^1I_g$ et ${}^2I_g$. La principale difficulté dans cette opération consiste à définir le fond continu : voisi notre méthode :

Nous l'avons d'abord éliminé la tache "plasmon" qui se superpose à la tache g, en mesurant d'abord la largeur du pic à mi hauteur, cette largeur correspond à $\Theta = 2$ (cf. II-B-3C) l'abaque II-10 (ou de la courbe II-5) permet de reporter la vraie valeur de $I_{\frac{1}{2}}(\Theta)$ pour les abscisses $\Theta = \pm 2, \pm 3$. Le report de cette hauteur AB sur les flancs de l'enregistrement microdensitométrique permet alors de déterminer le fond continu. Une erreur sur la détermination de Θ se traduit par une irrégularité de ce profil : on peut recommencer avec une valeur mieux ajustée. Nous donnons ci-dessous un exemple de profil de tache avec le tracé du fond continu, il correspond au cas expérimental *2.

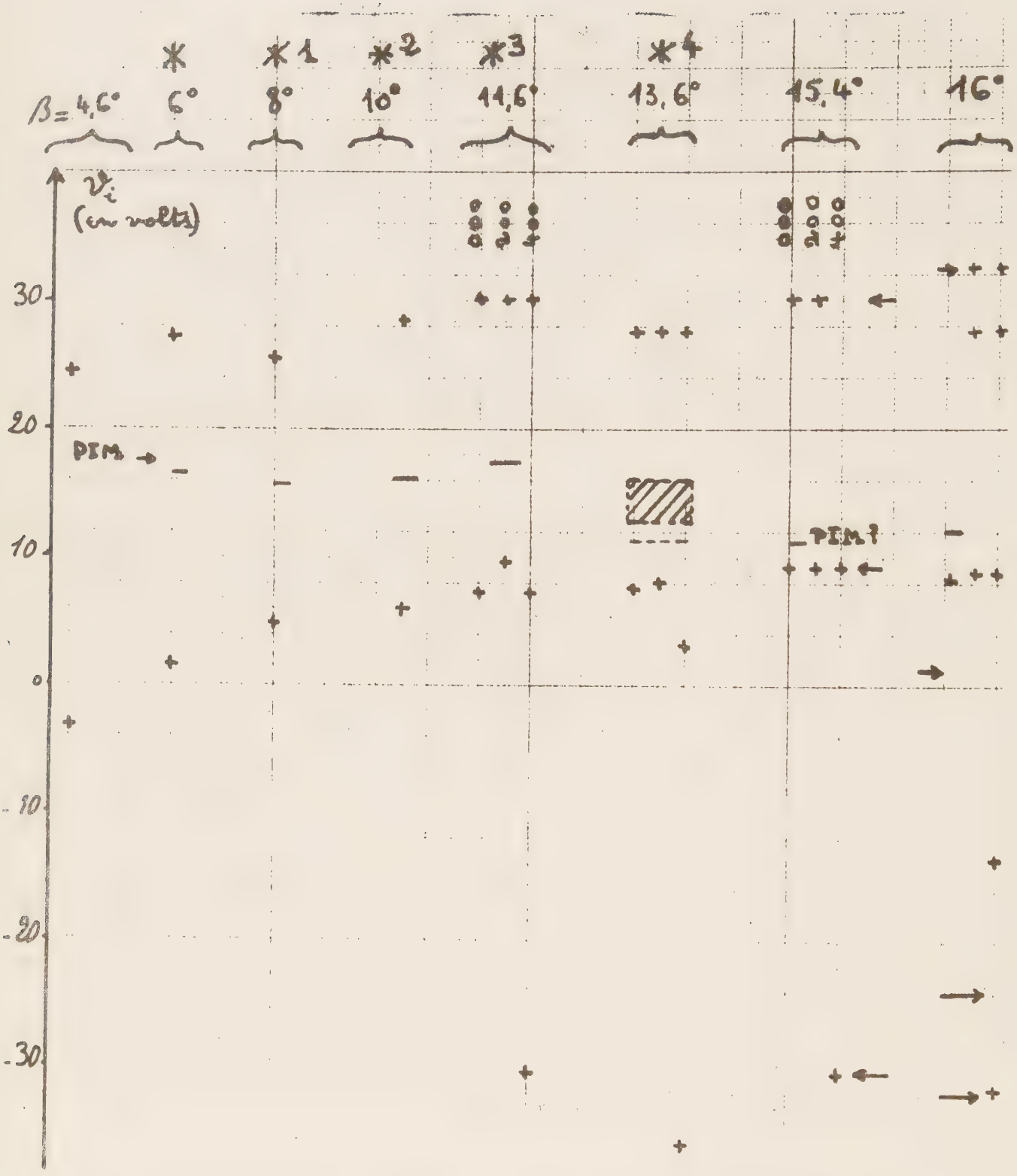
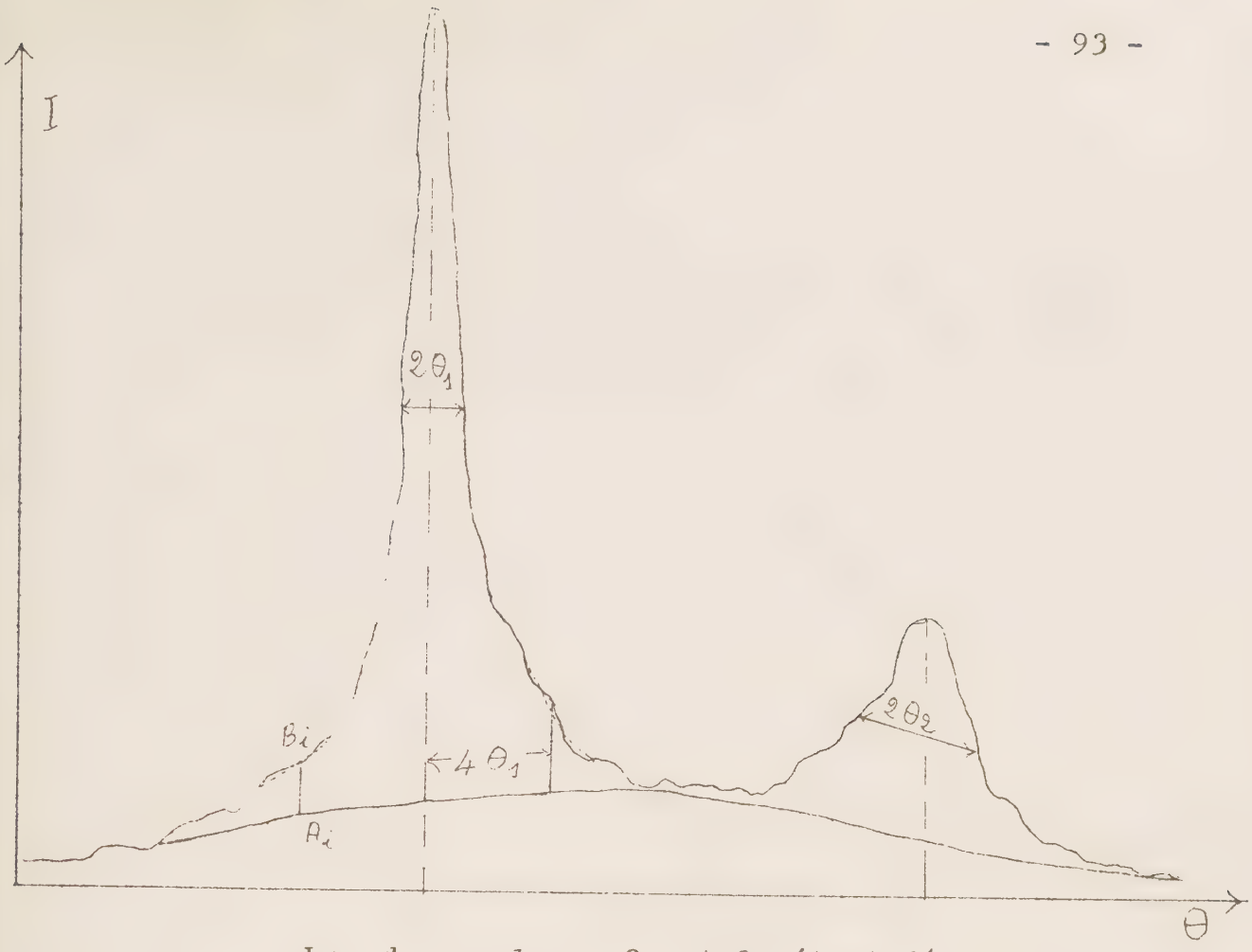


Figure IV-15 "Mesure" du "potentiel propre" en fonction de l'incidence du faisceau sur le prisme de NiO. Les mesures marquées * sont comparées aux calculs pour 6 faisceaux en position d'interaction systématique.



Les deux valeurs θ_1 et θ_2 étant désormais correctement déterminées on effectue une opération du même genre sur le faisceau direct.

- Résultats :

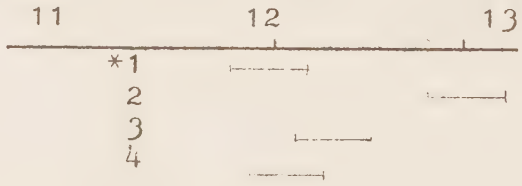
Dans le cas où l'on a cru pouvoir négliger les interactions accidentelles on a reporté les quantités $^1I_\theta/^1I_o$ expérimentales sur la courbe IV-14 avec les barres des erreurs dues surtout à la mauvaise détermination du fond continu. Les abscisses pour lesquelles $^1I_\theta/^1I_o$ expérimentales et théoriques se superposent permettent de définir l'incidence du faisceau, et l'on trouve les valeurs propres correspondantes à la même abscisse sur IV-14-bis.

Remarquons sur IV-14 que les valeurs de x déterminées sur les deux champs d'ondes ne sont pas compatibles, dans le cas *4. Cela laisse entendre qu'alors une interaction accidentelle perturbe le phénomène. De fait nous verrons que le P I M déterminé dans ce cas est tout à fait différent de celui trouvé dans le cas *1,2 et 3 qui vaut 16,2V $\pm$ 0,6.

./.

Rappelons que le P I M s'obtient très facilement en faisant V_1(expérimental) = V_0 + V_1'(calculé) puisque V_1 expérimental, proportionnel à l'angle de réfraction du faisceau se réfère au potentiel nul alors que le V_1' calculé se réfère au P.I.M.

	$V_1 - V_2$	$V_1 - V_2$	V_g
	mesures	calculées	
*1	19,87±0,45	18,20	11,93±0,25
*2	21,93±0,3	17,95	13,10±0,20
*3	20,66±0,50	18,05	12,40±0,25
*4	20,63±0,40	18,53	12,05±0,20



Il n'a pas été tenu compte dans les barres d'erreur des interactions accidentelles, qui provoquent présentement la dispersion des résultats. Puisque ces interactions mettent ici en jeu des indices élevés, elles n'ont d'effet puissant que lorsqu'une interaction accidentelle est très forte, c'est à dire, lorsque la sphère d'Ewald passe très près d'une tache.

C'est probablement ce qui a lieu pour la mesure *2 que nous éliminons car elle conduit à un résultat très différent des trois autres mesures qui sont très groupées. Nous en prenons donc la moyenne.

$$V(200) = 12,1 \text{ V} \pm 0,5 \text{ V}$$

L'erreur affichée tient compte de la dispersion de ces 3 mesures.

On observe que le résultats expérimental est en bon accord avec

./.

celui du calcul théorique peu précis pour les petits angles de diffraction.

Pour V_o on a trouvé successivement

15,6 V , 16,2 et 17,2 V $\pm$ 0,8 V

$$\boxed{V_o = 16,3 \text{ V} \pm 0,8}$$

Nous avons aussi mesuré la partie imaginaire des valeurs propres : $V'_o + V'_i$:

Pour le champ d'onde 1 on trouve environ 2 volts pour le champ d'ondes 2 : 1,2 volt.

COMPARAISON DES VALEURS PROPRES CALCULEES ET EXPERIMENTALES LORSQU'IL EXISTE DES INTERACTIONS ACCIDENTELLES

Après avoir attribué à V(200) sa nouvelles valeur, nous avons calculé les potentiels propres pour les deux derniers cas expérimentaux de la figure IV-16 : $\beta = 15,4°$ et $\beta = 16°$. La confrontation des pseudopotentiels calculés aux pseudopotentiels propres expérimentaux met l'accent sur certaines difficultés qui apparaissent lorsque l'on doit faire intervenir les interactions accidentelles :

La détermination des faisceaux intervenant dans le calcul peut se faire en utilisant les lignes de Kikuchi seules, puisque l'on connait approximativement l'orientation du cristal. Nous avons pu situer l'origine de Ko dans un cercle dont le diamètre est de l'ordre de 0,1 x $g_{(200)}$. Nous avons fait plusieurs calculs pour balayer ce domaine d'incertitude. Donnons pour les deux cas expérimentaux les réflexions que nous avons retenues et les valeurs de W correspondantes :

./.

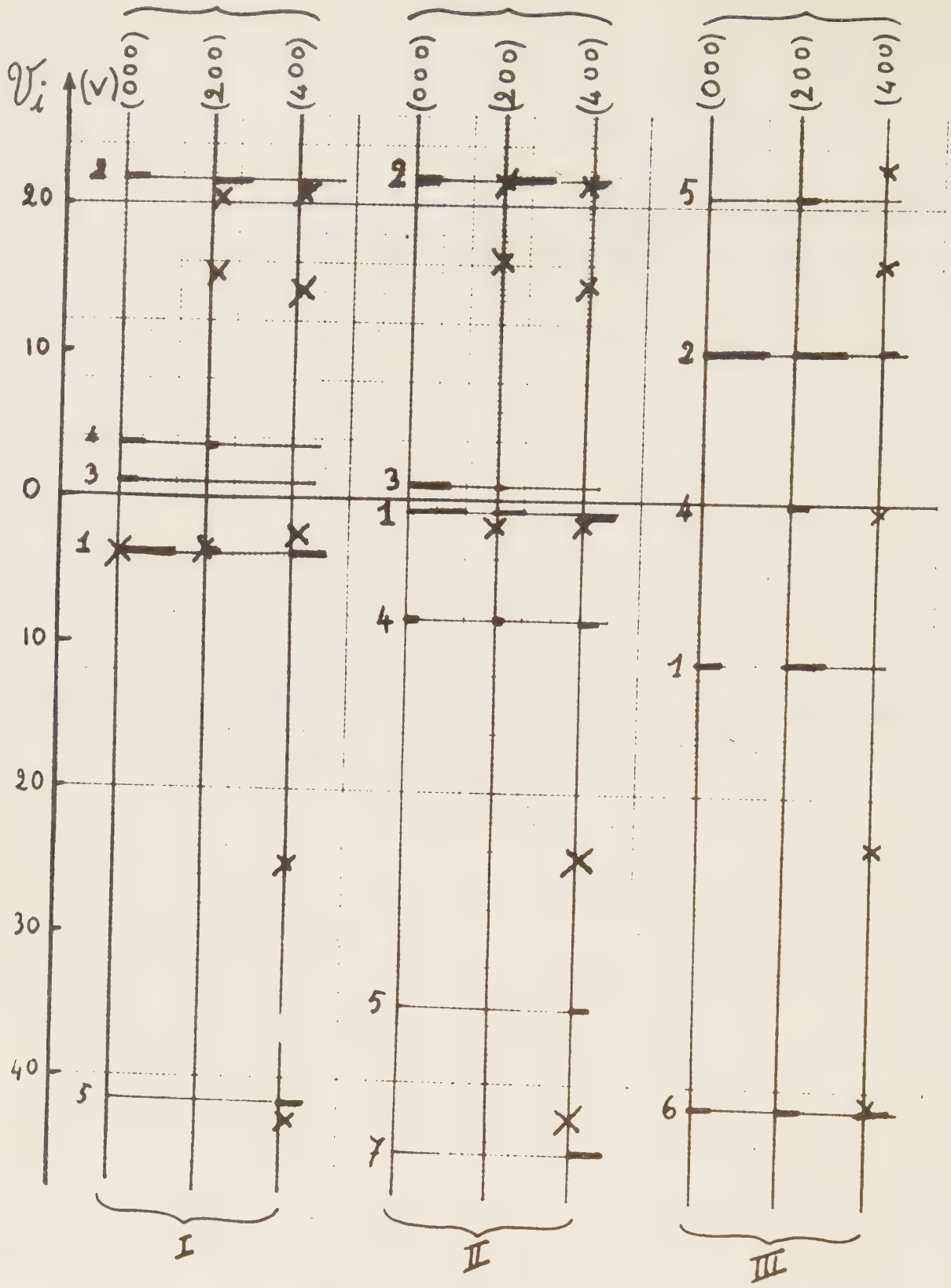


Figure IV-16. Schéma représentant les valeurs propres calculées pour 3 incidences voisines
i — Batonnets dont la longueur représente approximativement l'intensité du champs d'onde i dans la direction (2n00)
* Valeurs propres expérimentales.

pour $\beta = 15,4°$

hkl	200	400	$\bar{2}00$	$\bar{3}31$	$\bar{4}62$	$\bar{1}93$	662	
W_{hkl}	0,723	2,88	3,60	6,41	8,71	-8,50	-13,74	

pour $\beta = 16°$

hkl	200	531	062	400	$\bar{2}00$	462	$\bar{1}31$	262
W_{hkl}	0,67	0	0,80	3,1	3,55	6,95	8,60	3,80

Le résultat des calculs ont conduit aux observations suivantes :

1) dans le 1er cas : les valeurs propres varient peu avec l'incidence alors que dans le second, elles varient beaucoup(voir fig.IV-16) celà s'explique simplement par le fait que dans le second cas certaines valeurs de W_g "accidentelles" sont très faibles. La moindre variation d'incidence fait varier très fortement l'influence de ces faisceaux "accidentels".

2) Dans le 1er cas les $\gamma_i - \gamma_j$ calculés et expérimentaux coincident fort bien. On a représenté par le signe $\rightarrow$ sur la figure IV-15 les valeurs propres calculées. Une translation arbitraire (fonction de V_o) les fait coincider avec les valeurs propres expérimentales.

Dans le second cas la coincidence est moins bonne. Des valeurs propres expérimentales supplémentaires montrent que l'on a omis quelques faisceaux. Cette omission s'explique aisément par le fait que lorsque l'on fait intervenir des réflexions accidentelles d'indices élevés, les taches réciproques qui leur correspondent ne sont pas forcément dans le même plan, puisque la courbure de la sphère d'Ewald ne peut plus être négligée. Remarquons toutefois sur la figure IV-16 que certaines différences de valeurs propres calculées sont compatibles avec l'expérience.

./.

3) Pour les deux expériences le P.I.M. obtenu en faisant V_i exp - V_i calculé = V_o
est beaucoup plus faible (5 V de différence environ) que celui obtenu dans le cas où l'on négligeait les interactions accidentelles. On peut attribuer ce glissement à l'omission de quelques réflexions accidentelles dans le calcul. On voit d'ailleurs sur la figure 14 bis que V_i varie beaucoup avec l'incidence : lorsque l'on est au voisinage d'une interaction accidentelle forte la moindre erreur sur x conduit toujours à une erreur appréciable sur V_o.

C O N C L U S I O N

Dans ce travail nous nous sommes essentiellement attaché à montrer comment la mesure du pseudopotentiel pouvait être faite sans pour cela nécessiter des conditions drastiques sur la nature et la préparation de l'échantillon ; c'est pourquoi au lieu d'éliminer des sources d'erreurs dues à une mauvaise définition expérimentale nous avons au contraire, tenté d'évaluer leur influence sur la précision finale des résultats.

Les causes d'erreurs sont les suivantes :

- La mauvaise connaissance des conditions de diffraction (c'est la cause d'erreur la plus importante).
- La mauvaise définition de l'échantillon (forme et orientation du prisme dans le faisceau)
- L'effet perturbateur de la couche de contamination déposée sur l'arête.
- La distorsion de la réfraction sur les taches diffractées.

Les mesures que nous avons faites sont de deux types les mesures de V_o (qui s'effectuent obligatoirement à partir de la réfraction du faisceau direct) et celle des termes V_g.

Les mesures du P.I.M, malgré le manque d'informations précises sur les conditions de diffraction, qui auraient permis de réduire l'erreur de 1/3 environ, ont une précision qui reste supérieure à celle obtenue par d'autres méthodes, par exemple la méthode qui fait intervenir la différence de marche entre le faisceau d'électrons qui a traversé une lame mince d'épaisseur connue (Buhl 1959,

./.

Keller 1961) ou un prisme bien défini (Tomita 1968) et le faisceau qui n'a pas traversé l'échantillon. Cette différence de marche est mesurée en faisant interférer ces deux faisceaux au moyen du biprisme de Möllenstedt (1957).

Rappelons quelques résultats obtenus dans ce travail

KBr : $V_o = 9,0 \pm 0,7$ V

CO_3Ca: $V_o = 9,5 \pm 0,7$ V

Ni O : $V_o = 13,3 \pm 0,8$ V

Dans les conditions expérimentales idéales, l'erreur eut été de l'ordre de 0,4 V.

En ce qui concerne la mesure des termes V_g, si la précision des résultats expérimentaux que nous avons présenté est inférieure à celle donnée par Lehmpfuhl en 1971, nous pensons avoir suffisamment montré qu'une telle situation était la conséquence d'un goniomètre défectueux : il nous était pratiquement impossible de nous mettre dans les conditions d'incidence conseillées dans le texte. La finesse des photos montre cependant que la précision des pointés peut conduire à des résultats compétitifs avec un bon nombre de méthodes, dès que l'on peut régler la position de l'échantillon, et mesurer directement les angles que la platine gonio. Par exemple la mesure de V(200) pour le Ni O(=12,1 $\pm$ 0,5 V)pouvait atteindre une précision de 0,2 V.

La question qui se pose alors est de savoir si la qualité de l'échantillon n'influe pas de façon prédominante sur la précision de la mesure. Dans ces conditions, le choix de l'échantillon deviendrait essentiel. Or les imperfections sont de trois types:géométrique ,: cristallographique et physicochimique.

L'imperfection géométrique du cristal ne pose pas vraiment de problème, car on connait d'avance les angles

./.

que l'on peut obtenir. Le système d'abaque logarithmique (planche 4) permet de choisir entre plusieurs hypothèses d'ouverture et d'orientation de prisme, et ensuite de savoir si l'on a réfraction dans plusieurs prismes à la fois. Les pics réfractés sont alors élargis et ne fournissent plus directement le coefficient d'absorption.

On a vu (IV-C-2) que la perfection cristalline n'était pas indispensable, et que même une certaine imperfection faciliterait parfois leurs mesures. En effet on peut comparer sur une même photo les intensités des faisceaux et les potentiels propres pour des conditions de diffraction très voisines.

La principale difficulté expérimentale proviendra de l'effet de dérive du pic réfracté par interférence avec le faisceau parasite des électrons qui ont traversé le dépôt de substance recouvrant l'arête du prisme : il s'agit soit du carbone de contamination soit d'un dépôt chimique résiduel consécutif à un facettage par un procédé chimique ou électrolytique, d'où la nécessité de bien contrôler la composition physico-chimique de la surface.

Si l'on possède un bon microscope, on peut facilement mesurer l'épaisseur du dépôt en formant un image de l'arête à fort grossissement et légèrement défocalisée.

S'il s'agit de carbone ou d'un matériau amorphe la correction à apporter est mesurée sur l'abaque II-10, s'il s'agit d'un dépôt chimique cristallin d'une épaisseur inférieure à 50 Å la correction s'effectue de la même manière car l'absorption dans le dépôt est encore faible, de plus, on peut considérer comme négligeable l'éventuel dédoublement de la tache transmise par ce faisceau qui est très étalé par la diffraction de Fraunhoffer.

Finalement, comme nous le voyons, le mode de préparation de l'échantillon influe peu sur la précision des résultats. On peut donc espérer suivre commodément l'influence de la métallurgie physique de l'échantillon sur la valeur du pseudopotentiel.

A N N E X E S

I - Réfraction des électrons dans un prisme absorbant à arête arrondie

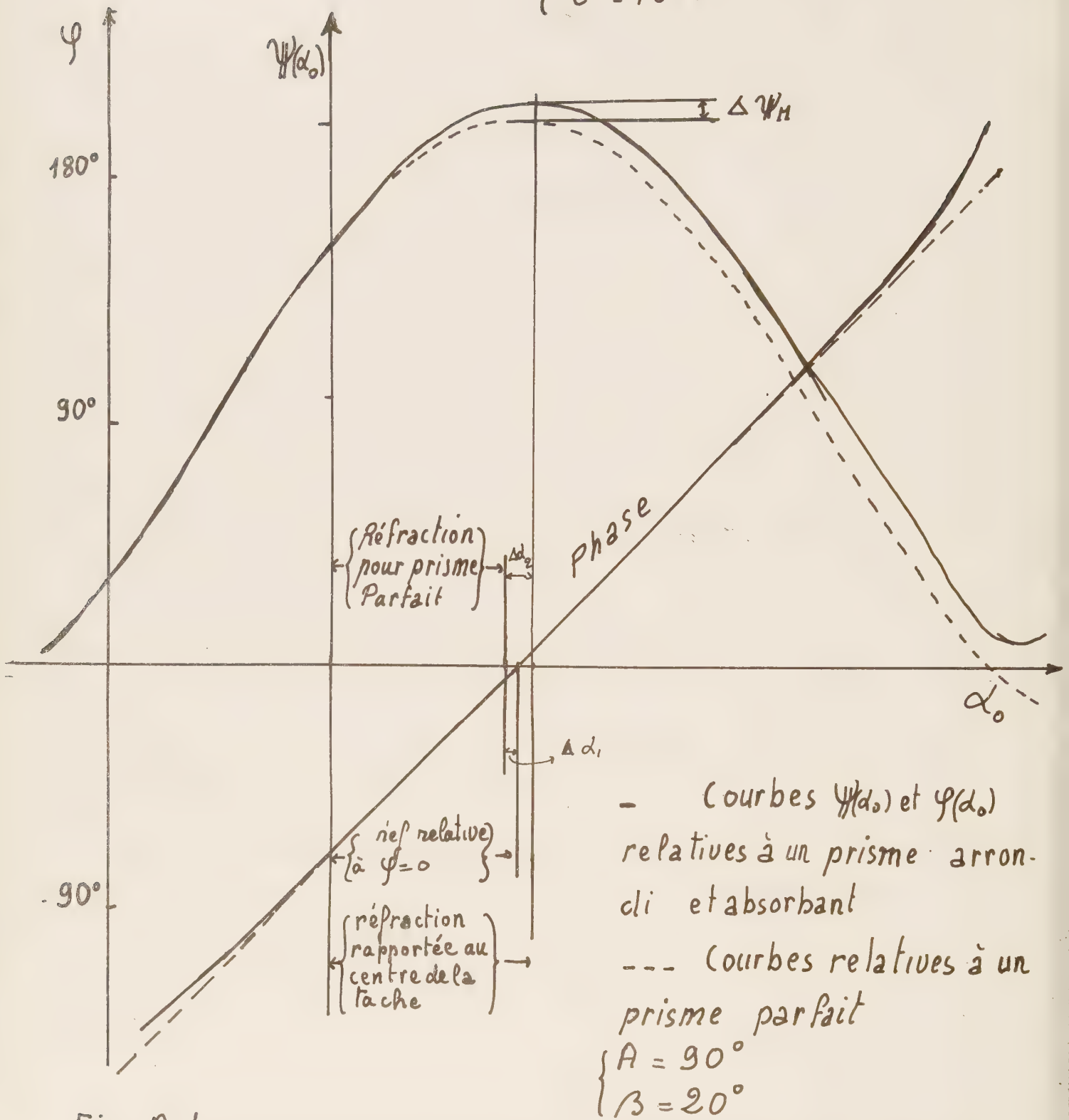
II - Etude de la distorsion des mesures des valeurs propres sur les taches diffractées G

III - Application de la théorie de Bethe à l'évaluation analytique des valeurs propres dans le cas de la théorie à N faisceaux pour les interactions systématiques

IV - Calcul des potentiels propres U_i et de l'intensité des champs d'ondes sur chacune des n directions de diffraction

V - Mesure du décalage des pics des doublets réfractés par interférences

$$\begin{cases} A = 90° \\ \beta = 20° \\ \varepsilon = 100\,\text{Å} \end{cases}$$



- Courbes $\Psi(\alpha_0)$ et $\varphi(\alpha_0)$ relatives à un prisme arrondi et absorbant

--- Courbes relatives à un prisme parfait

$$\begin{cases} A = 90° \\ \beta = 20° \end{cases}$$

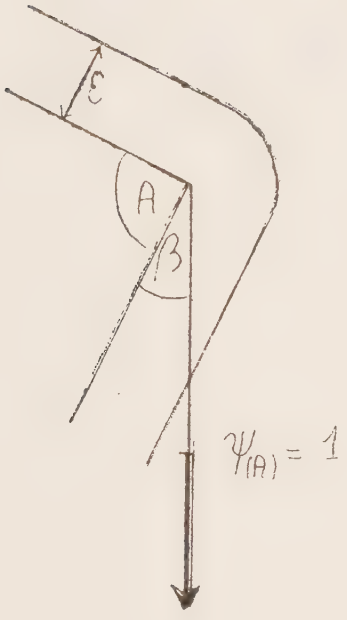
Fig A-1 Profil angulaire de la phase et de l'amplitude de l'onde transmise par un dépot de carbone sur un prisme, dont la forme est schématisée dans le texte. Aux décalages $\Delta\Psi$, $\Delta\alpha_1$, $\Delta\alpha_2$ près, ce profil est pratiquement identique à celui de l'onde transmise par un dépot non absorbant en forme de prisme parfait.

ANNEXE I

REFRACTION DES ELECTRONS DANS UN PRISME ABSORBANT A ARETE ARRONDIE

Nous avons admis au chapitre II B 3 que le cristal était recouvert d'un prisme de carbone supposé non absorbant et de même ouverture A que le cristal. Cette approximation grossière a permis de construire une abaque qui fournit graphiquement la dérive du faisceau réfracté dans le cristal, par interférences avec le faisceau transmis par le carbone.

Pour nous rendre compte de la valeur d'une telle approximation, nous allons envisager un cas sans doute plus proche de la réalité (voir schéma). Les deux faces du prisme sont recouvertes par deux lames minces de carbone d'épaisseur $\mathcal{E}$. Elles se rejoignent le long de l'arête par un secteur cylindrique. Le carbone est absorbant.



Nous avons calculé le profil $\psi(\alpha_0)$, $\varphi(\alpha_0)$ en appliquant la formule :

$$\psi(\alpha_0) = \int_0^{\mathcal{E}} e^{+\frac{\chi Z(x)}{2}} \times C^{\,j\frac{2\pi}{\lambda} Z(x,\alpha_0)}\, dx$$

tirée de la relation II.4 après avoir normalisé $\psi(x)$ sur l'amplitude émergente $\psi(0)$ passant par l'arête A, et référé φ à la phase de cette onde.

Les calculs ont été effectués sur Pallas en fonction :

- de l'ouverture du prisme A
- de l'incidence β
- de l'épaisseur de carbone $\mathcal{E}$

On a pris $\mathcal{M} = 0{,}75 \times 10^{-3}$ Å^{-1}, E = 80 KV

./.

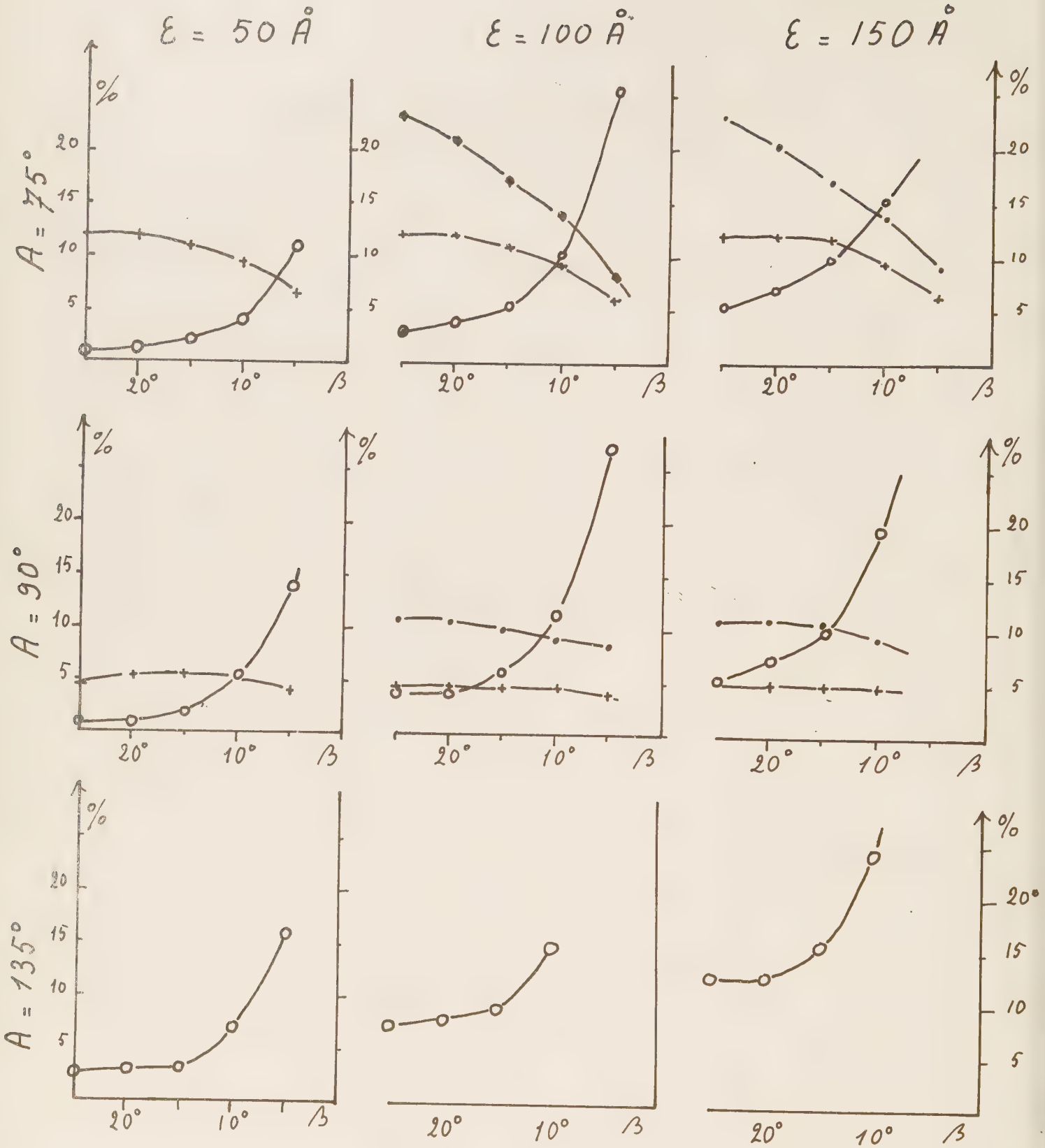


Figure A-2 Dérive relative de l'angle α pour lequel $\varphi = 0$ (+) et Ψ est maximum (·), en fonction de ε, A et i, lorsque l'on passe du prisme parfait au prisme à arête arrondie.
(-o-) : Courbes $\Delta\Psi_{Max} / \Psi_{Max}$ (Voir courbe A-1)

La figure A1, donne un exemple de profil phase-amplitude au centre de la tache. Il ressemble fort à celui se rapportant aux prismes non absorbants (en pointillé). On observe cependant que l'abscisse α_1 pour laquelle $\varphi = o$ et celle α_2 du sommet du pic sont décalées d'un angle $\Delta\alpha_1$ et $\Delta\alpha_2$ par rapport à celle, α_o, du centre de la tache transmise par le prisme parfait. On voit enfin que le maximum d'amplitude Ψ_M est plus important que dans le cas où il n'y a pas d'absorption (celà est dû à la normalisation que nous avons choisie).

On a reporté sur la figure A2 les quantités $\Delta\alpha_1/\alpha_o$, $\frac{\Delta\alpha_2}{\alpha_o}$ et $\Delta\Psi_M/\Psi_M$ en fonction de β, A et ε.

Le tableau de graphiques permet de faire les constatations suivantes :

- $\Delta\Psi_M/\Psi_M$ croit avec A, ε et $1/\beta$
- à partir de A = 90° $\Delta\alpha_1/\alpha$ et $\Delta\alpha_2/\alpha$ sont pratiquement indépendants de l'épaisseur de carbone et de l'incidence du faisceau, et lorsque A atteint 135° on peut considérer ces décalages comme négligeables.

Il est donc encore possible d'utiliser l'abaque : II.10 pour mesurer la dérive du pic réfracté : il suffit d'effectuer les corrections suivantes :

1) On introduit un potentiel apparent pour le carbone défini par $V'_{II} = V_{II}\left(1 + \frac{\Delta\alpha_1}{\alpha_o}\right)$ en effet pour les faibles épaisseurs de carbone; c'est la phase qui joue le plus grand rôle dans la dérive du pic.
2) Pour corriger l'effet d'absorption, on remplace la courbe C_1 par l'un des cercles de diamètre inférieur. Le choix de ce diamètre est donné par la relation :

$$D = 1 - \frac{\Delta\Psi_M}{\Psi_M}$$

Remarquons qu'il serait très facile d'utiliser l'abaque de façon rigoureuse, en tenant compte du décalage $\Delta\alpha_2$ du centre de la tache : il suffirait d'articuler la famille de de courbes C_{II} autour de Ω, mais ce perfectionnement n'interviendrait que pour des épaisseurs de carbone telles que l'effet de contraste de phase interdirait les mesures d'intensité en théorie dynamique.

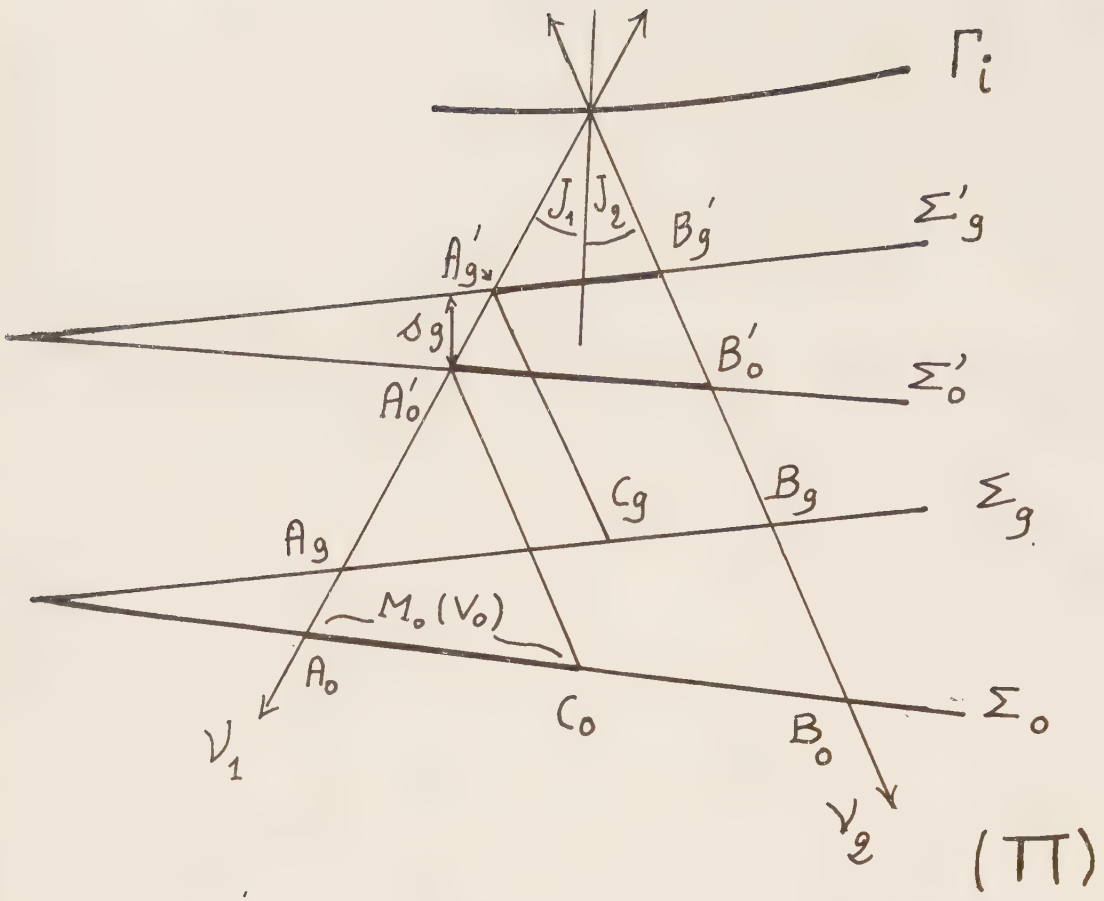

Γ_i
J_1
J_2
B'_g
Σ'_g
A'_{g_w}
δ_g
B'_0
Σ'_0
A'_0
C_g
B_g
Σ_g
A_g
$M_0(V_0)$
A_0
C_0
B_0
Σ_0
V_1
V_2
(Π)

Figure A-3

ANNEXE II

ETUDE DE LA DISTORSION DES "MESURES" DES VALEURS PROPRES SUR LES TACHES DIFFRACTEES G (VOIR CHAP.III B 3)

Soit, sur une nappe de dispersion Γ , un point A définissant une valeur propre $\mathcal{V}$ en volts de l'équation de Schrödinger pour une incidence donnée du faisceau. Les intersections des deux normales aux faces du prisme $\mathcal{V}_1$, et $\mathcal{V}_2$ issues de ce point, avec les sphères Σ_o et Σ_g , déterminent des segments $A_oA'_o$ et $A_gA'_g$ proportionnels aux angles de réfraction des faisceaux transmis et réfractés. Nous appellerons ces segments :
"Mesure de $\mathcal{V}$ " sur le faisceau o ou g et nous les désignerons par le symbole : $M_o(\mathcal{V})$ et $M_g(\mathcal{V})$.

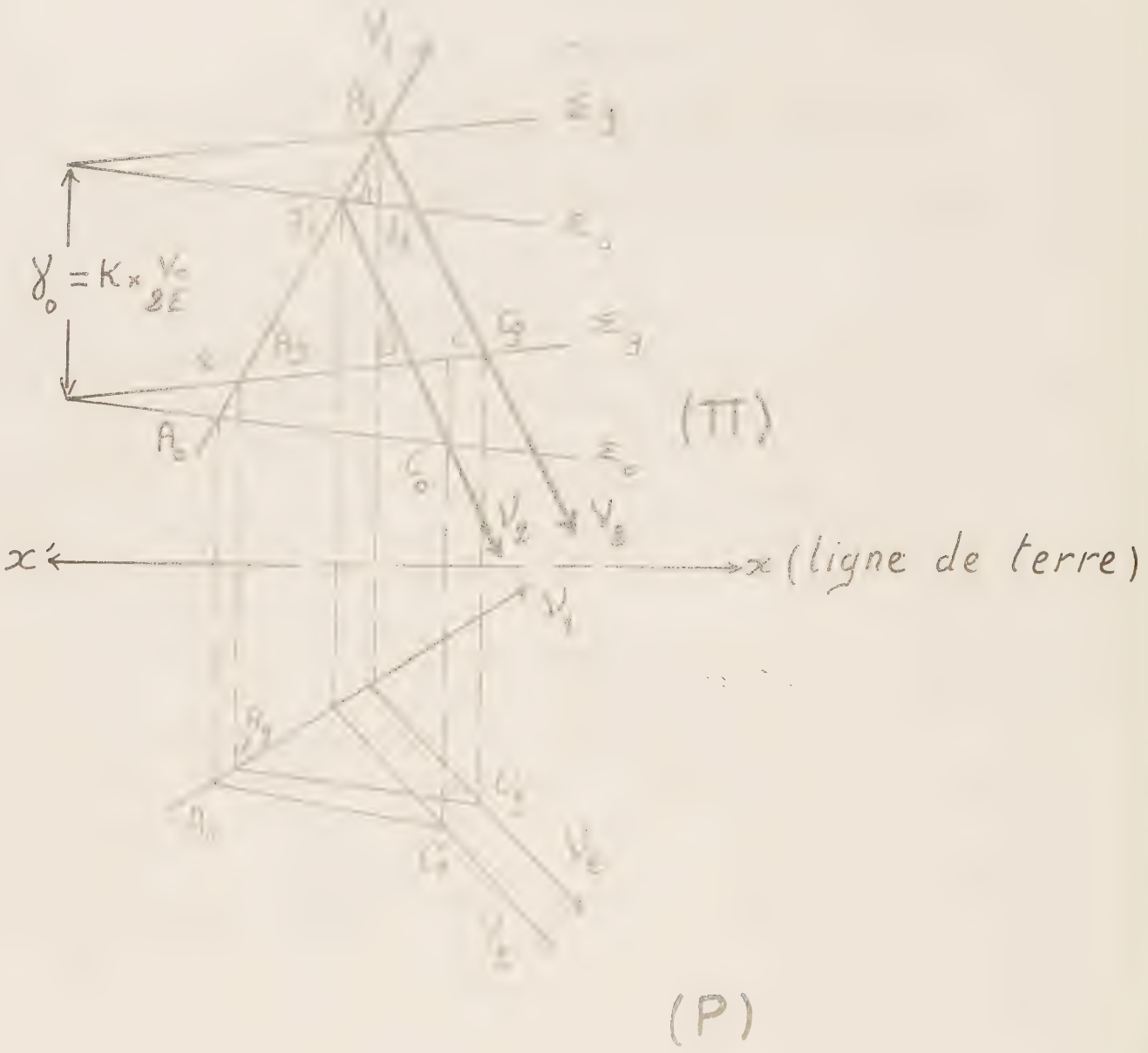
En fait, la valeur propre est définie à une constante prés. Si elle est définie par rapport à l'énergie potentielle des électrons dans le vide, les surfaces Σ_o et Σ_g seront des sphères de rayon K, vecteur d'onde dans le vide. Si elle est définie par rapport au P.I.M. dans le cristal (on l'appelle alors $\mathcal{V}^1$), les surfaces utilisées pour définir la mesure sont des sphères Σ'_o et Σ'_g de rayon $K(1 + \frac{V}{2E})$.

On a représenté sur la figure A3 ces deux familles de sphères et construit $M_o(\mathcal{V}^1)$, $M_g(\mathcal{V}^1)$, $M_o(\mathcal{V})$ et $M_g(\mathcal{V})$ On observe qu'en général M_o est différent de M_g. On dit alors que la "mesure de $\mathcal{V}$ " sur g subit une distorsion et l'on définit une distorsion relative $\frac{\Delta M}{M} = \frac{M_g - M_o}{M_o}$

En outre, compte tenu de la relation : $\mathcal{V} = \mathcal{V}^1 + Vo$ on peut dire que sur la figure A3 on a $A_o C_o = M_o(V_o)$
$A_g C_g = M_g(V_o)$

et l'on constate sur cette figure que la distorsion est différente sur la mesure de V_o et sur celle de $\mathcal{V}^1$. Il paraît donc intéressant d'évaluer séparément la distorsion sur $M_g(V_o)$ et $M_g(\mathcal{V}^1)$.

./.


$y_0 = K \times \frac{y_c}{2\varepsilon}$
(Π)
x' ← → x (ligne de terre)
(P)

Comme $\vec{v}_1$ et $\vec{v}_2$ ne sont généralement pas contenus dans le plan (π) de la figure (défini par les vecteurs $\vec{K}$ et $\vec{g}$), nous utiliseront la géométrie descriptive : le deuxième plan de projection sera le plan P parallèle à la plaque photographique. Nous pourrons ainsi évaluer ΔM_x dans la direction parallèle à la ligne de terre x'x et ΔM_y dans la direction perpendiculaire.

1) Distorsion dans la mesure du P I M

Dans tout ce qui suit j_i est l'angle entre la projection de v_i sur (π) et le vecteur d'onde incident, compte tenu du fait que θ est petit, la figure ci-contre fournit les relations suivantes:

$$\Delta M_x = A_g C_g - A_0 C_0 = C C_g - a A_g$$

$$a A_g = x \theta \, tg\, j_1$$

$$C C_g = D C_g - D C$$

avec $D C_g = A'_0 e = (x + \gamma_0 tg\, j_1) \times \theta (tg\, j_1 + tg\, j_2)$

$$D C = x + \gamma_0 (tg\, j_1 + tg\, j_2)\, \theta\, tg\, j_2$$

d'où $\Delta M_x = D C_g - D C - a A_g$

$$= \theta \gamma (tg\, j_1 + tg\, j_2)(tg\, j_1 - tg\, j_2)$$

avec $\gamma (tg\, j_1 + tg\, j_2)$ par définition $= 1/x$.

$$\boxed{\frac{\Delta M_x}{M_x} = (tg\, j_1 - tg\, j_2) \times \theta} \qquad (A\text{-}1)$$

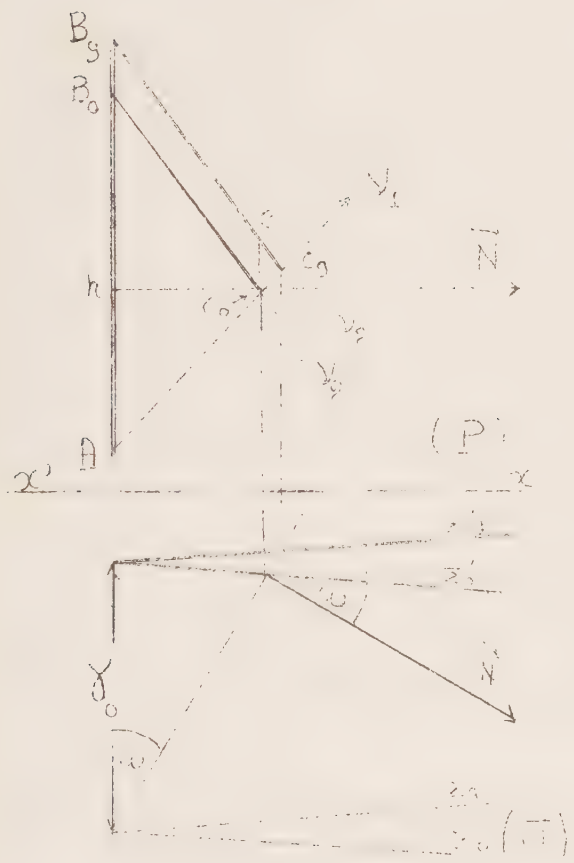
Cette distorsion est indépendante de x comme on pouvait s'y attendre, et elle s'annule pour $j_1 = j_2$

Evaluons maintenant dans le plan P la composante ΔM_y de ΔM pour deux cas particuliers simples afin de se rendre compte de l'importance de la variation de la direction de réfraction lorsque l'arête du prisme est incliné de ω sur le plan P.

./.

L'abscisse x du point A n'intervenant pas dans la distorsion, on le situe au point de Laue.

a) Cas où l'arête (définie par $\vec{N}$) est contenue dans le plan (Π)



La projection de $\vec{\nu}_1$ et $\vec{\nu}_2$ dans le plan (Π) sont confondues et l'on a $\int_1 = -\int_2 = \omega$ (ω : angle d'inclinaison de l'arête par rapport à P). La mesure de V_o dans (Π) est donc nulle. Seule subsiste la composante M_y.

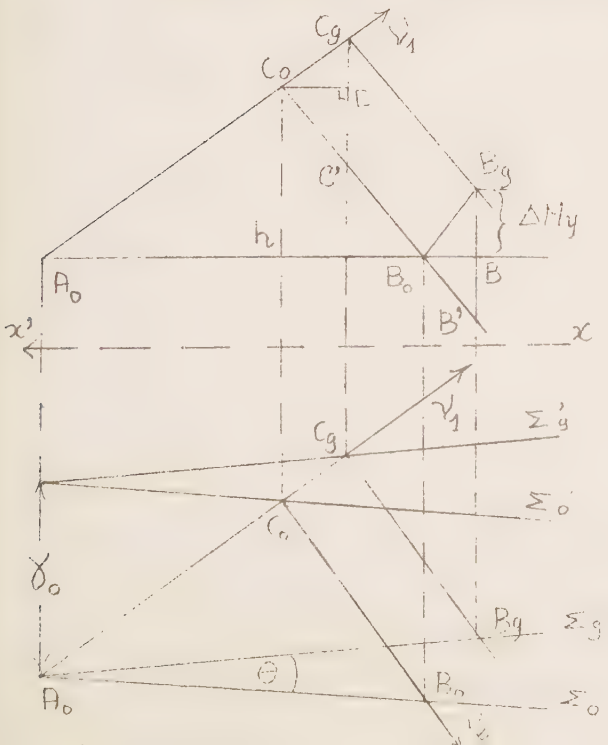
On voit sur la figure ci-contre que $\Delta My = B_o B = C_o C$. Or les triangles $A\ C_o\ B_o$ et $C_o\ C_g\ C$ sont semblables il vient donc :

$$\frac{\Delta M}{M} = \frac{C_o C}{A B_o} = \frac{\gamma_o tg\omega\ \Theta\ tg\omega}{\gamma_o\ tg\omega}$$

$$\boxed{\frac{\Delta M}{M} = \Theta\ tg\omega} \quad (A\text{-}2)$$

Puisque $M_o = M_y$ et ΔM_y sont colinéaires, il n'y a pas de distorsion angulaire.

2) Cas où la projection de l'arête $\vec{N}$ sur (P) est normale à (Π)



D'après la figure II-2 et le chapitre II-A-3 on sait que $\overrightarrow{A_o B_o}\ (= \vec{M})$ dans P sera parallèle à x x'.

Sur la figure ci-contre on observe que l'on a la relation :

$\Delta M_y = C_g C' - B B'$ que les 2 triangles $A_o\ C_o\ h$ et $C_o\ C_g\ E$ puis les trois triangles $C_o\ B_o\ h$, $C_o C' E$ et $B\ B_o\ B'$ sont semblables. On obtient alors :

$C_g C' = C_g E + E C'$ soit

$\Delta M_y = C_g E + E C' - B B'$

./.

avec $C_g E = C_o h \times \frac{C_o E}{A_o h}$

$E C' = C_o h \times \frac{C_o E}{h B_o}$

$B B' = C_o h \times \frac{B_o B}{h B_o}$

d'où $\Delta M_y = C_o h \left(\frac{C_o E}{A_o H} + \left(\frac{C_o E - B_o B}{H B_o} \right) \right)$

avec $A_o h = \gamma_o \cdot tg j_1$, $B_o h = \gamma_o tg J_2$

$C_o E = \gamma \theta \ tg^2 J_1$

$B_o B = \Delta M_x = \gamma \theta \left(tg^2 j_1 - tg^2 \ j_2 \right)$

(résultat déjà connu) On parvient alors au résultat simple :

$$\boxed{\frac{\Delta M_y}{M_x} = \theta \ tg \omega} \qquad (A\text{-}2 \text{ bis})$$

Ce rapport représente un angle, en général plus petit que l'angle de Bragg.

DISTORSION DANS LA MESURE D'UNE VALEUR PROPRE LORSQU'ON LUI DONNE POUR ORIGINE L'ENERGIE DES ELECTRONS AU P.I.M

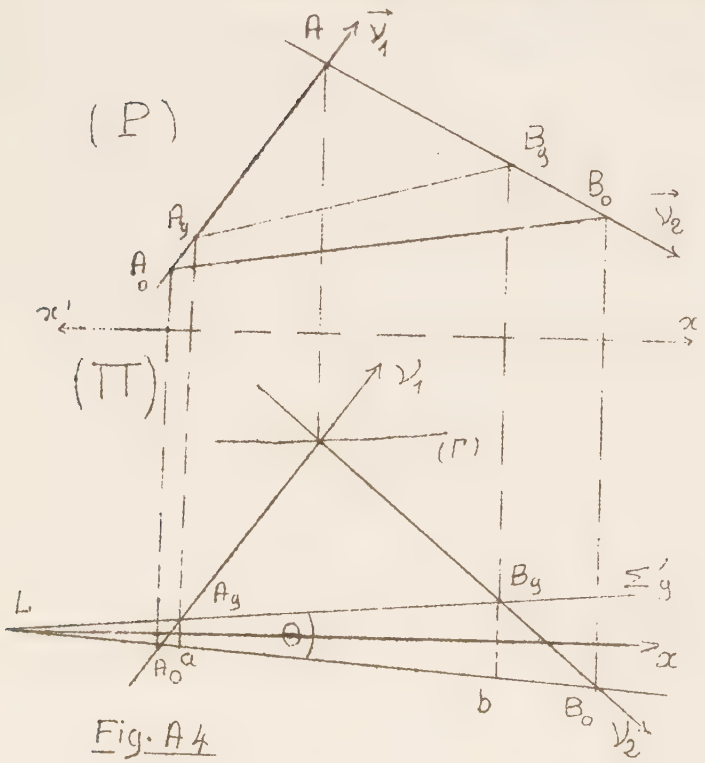


Fig. A4

Sur la figure A4 qui donne la construction de la mesure d'une valeur propre. Appelons $\Delta M_x = Proj_{\Pi}(A_g B_g - A_o B_o)$ et désignons par γ_g la valeur propre mesurée par rapport à

on a $-\Delta M_x = A_o a + b B_o$

$\Rightarrow -\Delta M_x = \delta_g \ tg j_1 + (\delta_g + M_x \theta) tg j_2$

$= \frac{\delta_g}{\gamma} \cdot M_x + M_x \theta \ tg j_2$

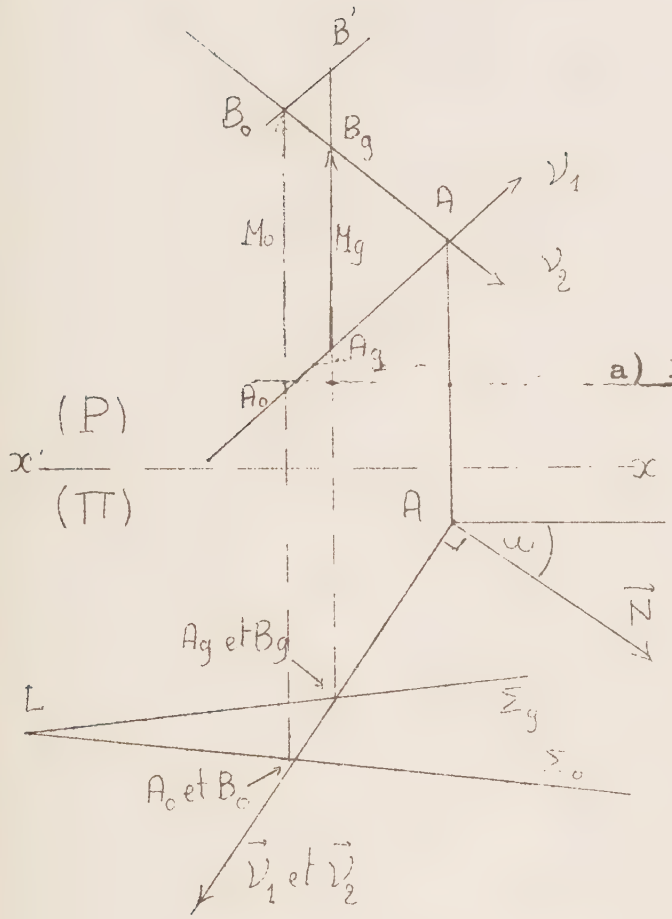
$$\Rightarrow \boxed{\frac{-\Delta M_x}{M_x} = \frac{\delta_g}{\gamma} + \theta \cdot tg j_2} \qquad (A.3)$$

Le premier terme de la parenthèse n'est pas a proprement parler une erreur. Il ne représente en fait qu'un changement d'origine.

Le second terme, par contre, représente véritablement une distorsion celle ci dépend de l'incidence sur la face de sortie.

La projection du phénomène dans le plan P montre que l'on peut avoir une distorsion dans le plan y. notamment lorsque l'arête N du prisme est inclinée d'un angle ω

Voyons dans des cas simples l'importance de distorsion



a) l'arête se trouve dans le plan(TT)

On a alors $j_1 = -j_2 = \omega$

Traçons B_o B' parallèle à A_o A_g

La similitude des triangles $B_o B' B_g$ et B_o A_o A conduit à écrire

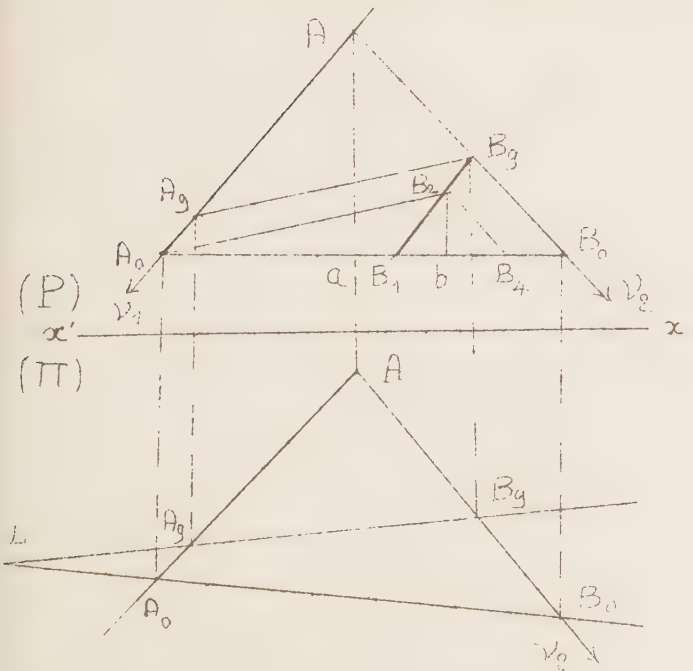
$$\frac{\Delta M_y}{M_y} = \frac{-\delta_g}{\gamma} \qquad (A-4)$$

soit $\Delta M_y = -\delta_g \times 2k \times a \quad (a = tg i_1 + tg i_2)$

Il n'y a donc pas de distorsion :

ΔM_y est la mesure de δ_g à 2 k près.

b) Cas où la projection de $\vec{N}$ sur P est normal au plan(TT)



On trace dans P : $A_o B_2$, équipollent à $A_g B_g$. La droite $B_g B_2$ B_1 est donc parallèle à $A A_o$.

Traçons B_2 B_4, parallèle à $B_g B_o$

si h est la projection de B_2 sur AB

on a $\Delta M_y = B_2$ b

Or les triangles A_o A B_o et B_1 B_2 B_4 sont semblables (côtés //)

$$\frac{B_2 b}{A\ a} = \frac{B_1\ B_4}{A_o\ B_o}$$

or Aa = γ tg ω

$A_2 B_2 = \Delta_x$

./.

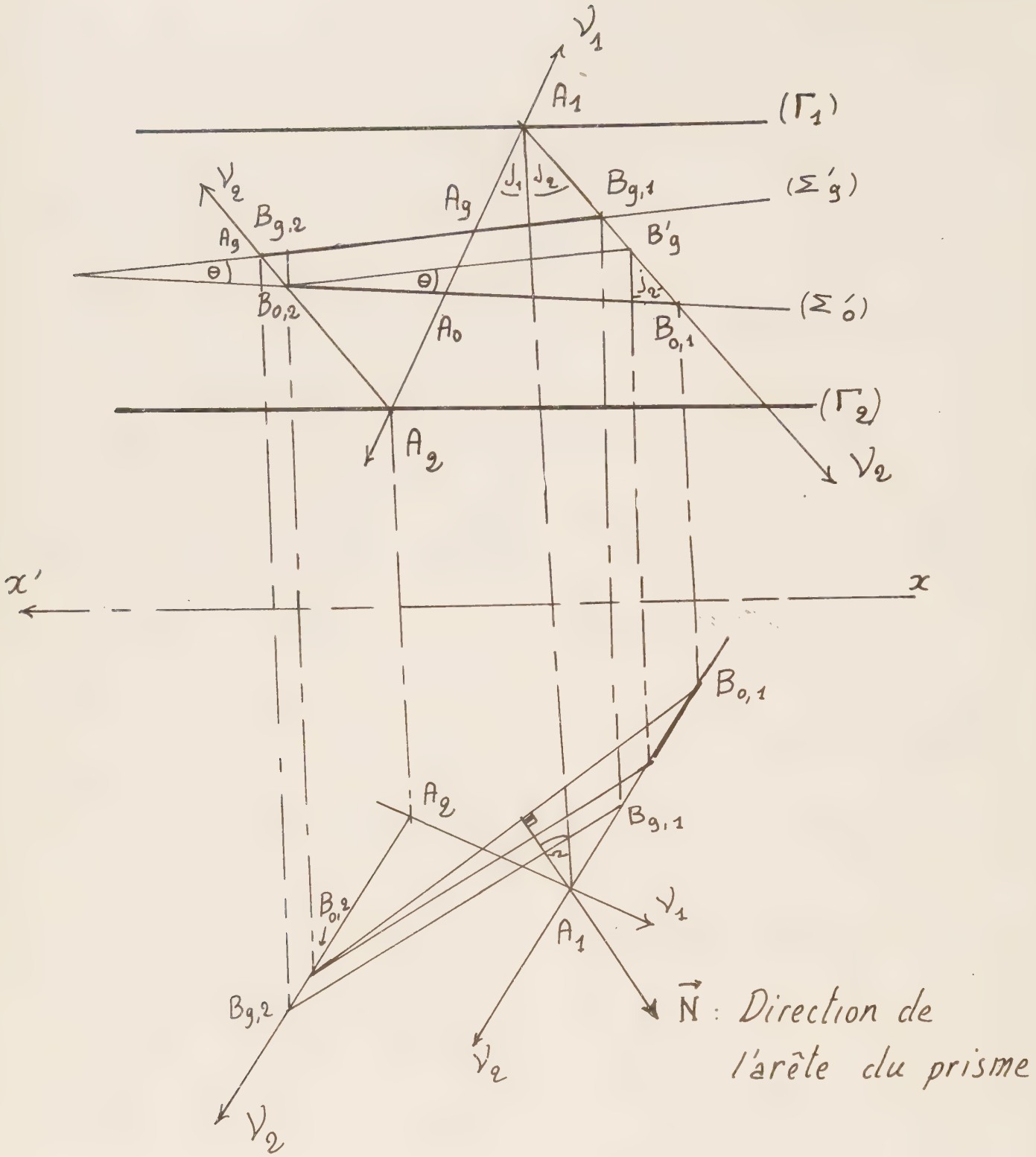

V_1
A_1
(Γ_1)
V_2
$B_{g,2}$
A_g
J_1
J_2
$B_{g,1}$
(Σ'_g)
B'_g
Θ
Θ
j_2
$B_{0,2}$
A_0
$B_{0,1}$
(Σ'_0)
(Γ_2)
A_2
V_2
x'
x
$B_{0,1}$
A_2
$B_{g,1}$
$B_{0,2}$
V_1
A_1
$\vec{N}$: Direction de l'arête du prisme
$B_{g,2}$
V_2
V_2

Figure A-6

$B_1 B_4 = \Delta M_x$ non compte tenu de la distorsion due à s_g

$$\Rightarrow \Delta M_y = \gamma \operatorname{tg}\omega \cdot \theta \operatorname{tg} j_2$$

$$\Rightarrow \boxed{\frac{\Delta M_y}{M_x} = \theta \operatorname{tg}\omega \times \frac{\theta j_2}{\operatorname{tg} j_1 + \operatorname{tg} j_2}} \quad (A\text{-}5) \text{ (valeur majorée par } \theta \operatorname{tg}\omega)$$

Cette distorsion angulaire est donc pratiquement la même que pour le P I M, en effet on a vu que pour que s_g et $\vec{V}_i$ théoriques et expérimentaux puissent être comparés il faut que j_1 soit petit (voir remarque III-2)

DISTORSION DANS LA MESURE D'UNE DIFFERENCE DE VALEURS PROPRES

La construction figure A 6 s'effectue comme pour le cas précédent (figure A 4) mais ici on fait intervenir à la fois 2 nappes de dispersions Γ_1 et Γ_2. Si $\vec{V}_1$ n'est pas trop incliné on peut considérer que leur distance ne varie pratiquement pas dans le domaine ou $\vec{V}_1$ les coupe.

$B_{o2}\ B_{o1}$ et $B_{g2}\ B_{g1}$ représentent la mesure de $\gamma_2 - \gamma_1$ sur les directions O et G et la distorsion $\overrightarrow{\Delta M}$ est représentée par $\overrightarrow{B_{g2}\ B_{g1}} - \overrightarrow{B_{o2}\ B_{o1}}$

On voit directement sur la figure que $\frac{\Delta M_x}{M_x} = \theta \times \operatorname{tg} j_2$ (A 6)

j_2 on le rappelle est ici l'angle formé par le vecteur d'onde incident et la projection dans le plan

Pour évaluer la distorsion selon y il suffit de remarquer que dans le cas précédent (relation A 5) elle s'exprimait simplement sous forme relative de sorte que l'on peut écrire :

$$\frac{\Delta M_y}{M_x} = \frac{\Delta M_{2y} - \Delta M_{1y}}{M_{2x} - M_{1x}} = \theta \operatorname{tg}\omega \frac{\operatorname{tg} j_2}{\operatorname{tg} j_1 + \operatorname{tg} j_2}$$

en général tout à fait négligeable.

Lorsque l'arête du prisme est contenue dans (Π) il n'y a plus de distorsion sur la mesure, car les effets du paramètre d'erreur sont les mêmes sur les 2 nappes

ANNEXE III

APPLICATION DE LA THEORIE DE BETHE A L'EVALUATION ANALYTIQUE DES VALEURS PROPRES DANS LE CAS DE LA THEORIE A N FAISCEAUX POUR LES INTERACTIONS SYSTEMATIQUES

Les potentiels dynamiques de BETHE (1928)

On suppose au départ que parmi les N faisceaux diffractés deux seulement sont intenses - le faisceau 0 et le faisceau g, les autres faisceaux h sont très faibles (cette hypothèse est en général vérifiée dans le cas des interactions systématiques). On néglige les interactions entre les faisceaux faibles. La ligne h de l'expression III.4 de l'équation de Shröndinger s'écrira :

$$U_h \psi_0 + U_{g-h} \psi_g + (k^2 - k_h^2)\psi_h = 0$$

$$\Rightarrow \psi_h = - \frac{U_{h-g}\psi_g + U_h \psi_0}{k^2 - k_h^2}$$

On peut donc exprimer ψ_h en fonction des ψ_0 et ψ_g seuls et les lignes 0 et g de III.4 prendront la forme :

$$\left.\begin{aligned} (k^2 - k_0^2 - U_{11})\psi_0 + (U_g - U_{12})\psi_g &= 0 \\ (U_{-g} - U_{21})\psi_0 + (k^2 - k_g^2 - U_{22})\psi_g &= 0 \end{aligned}\right\}$$

où, lorsque l"on s'en tient aux cristaux centrosymétriques :

$$U_{11} = U_{22} = \sum'_h \frac{U_h^2}{k^2 - k_h^2} \qquad (\Sigma' : \text{somme pour } h \neq g)$$

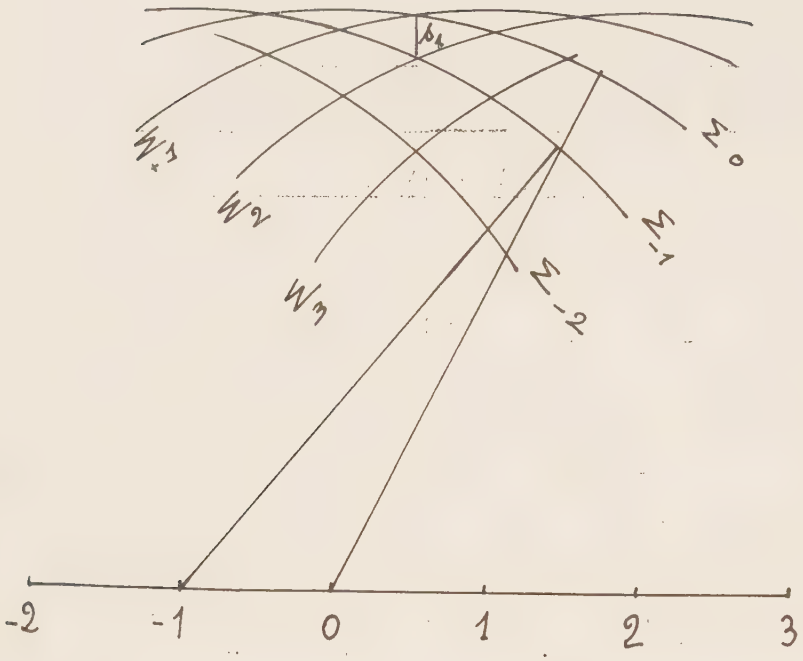
$$U_{21} = U_{12} = \sum'_h \frac{U_h U_{h\,g}}{k^2 - k_h^2}$$

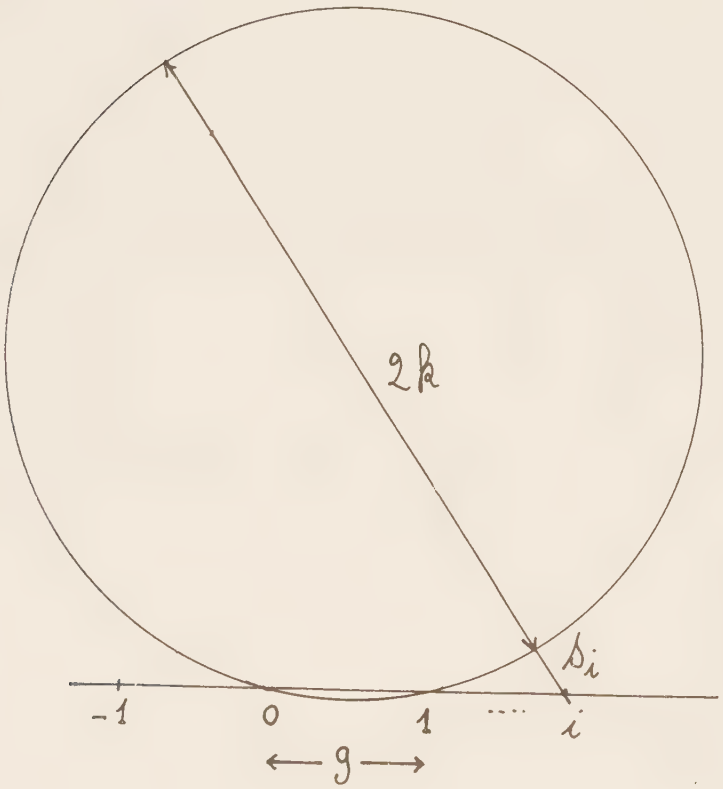
U_h pouvant être complexe.

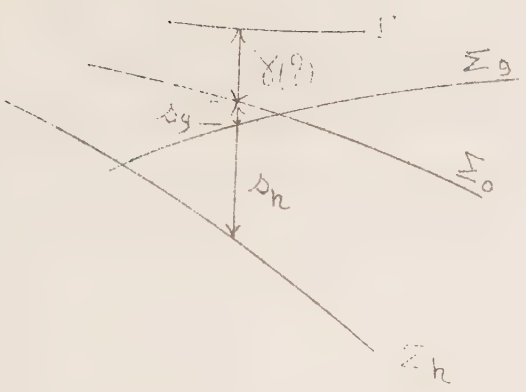
On retombe donc sur un traitement à deux faisceaux.

La difficulté d'utilisation de ces formules consiste à exprimer $k^2 - k_h^2 = 2k s_h + 2k\gamma$ puisque au départ c'est 2 Kσ que l'on cherche. (voir figure suivante)

./.


Δ_i
W_{-1}
W_2
W_3
Σ_0
Σ_{-1}
Σ_{-2}
-2
-1
0
1
2
3


2k
Δ_i
-1
0
1
i
g



Pour simplifier les calculs nous nous placerons dans le cas où $S_g=o$ puisque nous avons montré, chapitre III.C-1 qu'il était nécessaire d'être dans les conditions de Bragg pour mesurer V_g. Calculons donc les valeurs propres. Pour deux positions sur l'axe systématique de la tache G intense.

1 - <u>La réflexion g est de 1ère ordre sur l'axe systématique</u>

Le schéma ci-contre représente les cercles Σ_g qui nous intéressent et fournissent l'indiçage des taches g. On voit que par symétrie

$$2\,ks_{-1} = 2ks_2$$
$$2ks_{-2} = 2ks_3$$

Ces valeurs sont géométriquement très faciles à évaluer, il suffit de remarquer que la puissance de la tache réciproque i par rapport à la sphère d'Ewald définie par la condition d'incidence que l'on s'est fixée vaut, compte tenu des proportions de la figure

$$P(i) = (2k + s_i)\, s_i \;\#\; 2k s_i$$

$$P(i) = ig \times (i-1)\times g = i\times(i-1)\times g^2$$

(i numéro de la tache) on trouve ainsi :

$$2ks_{-1} = 2ks_2 = 2\,g^2$$
$$2ks_{-2} = 2ks_3 = 6\,g^2$$

et l'on trouve, si l'on appelle $\mathcal{U}$ l'une des valeurs propres $2k\gamma$

$$U_{11} = \frac{U_{-1}^2 + U_2^2}{2g^2 + \mathcal{U}} + \frac{U_2^2 + U_3^2}{6g^2 + \mathcal{U}}$$

$$U_{12} = \frac{2U_1U_2}{2g^2 + \mathcal{U}} + \frac{2U_{-2}U_3}{6g^2 + \mathcal{U}}$$

Puisque $s_1 = 0$ (conditions de Bragg), l'équation caractéristique devient bicarrée :

$$\mathcal{U} - U_{11} = \pm U_g - U_{12}$$

Or le cristal est centrosymétrique : $(U_1=U_{-1}, U_2 = U_{-2})$ on trouve donc :

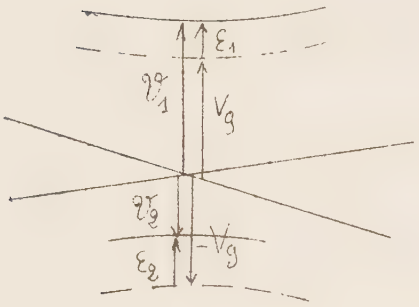
$$\mathcal{U}_1 = + U_g - U_{12} + U_{11} = U_g + \frac{(U_1 - U_2)^2}{2g^2 + U_1} + \ldots$$

$$\mathcal{U}_2 = -U_g + U_{12} + U_{11} = U_g + \frac{(U_1 + U_2)^2}{2g^2 + U_2} + \frac{(U_2 + U_3)^2}{6g^2 + U_2}$$

On remarque qu'en général $2g^2$ est sensiblement plus grand que $\mathcal{U}_1$ on fausse donc très peu la solution en prenant dans le second membre les valeurs de U que l'on aurait en théorie à 2 faisceaux.

$$\mathcal{U}_1 = U_1 \ , \ \mathcal{U}_2 = -U_1$$

Les valeurs propres prennent alors une forme très simple : nous les exprimerons désormais en volts.



$$\left.\begin{aligned} \mathcal{V}_1 &= V_1 + \mathcal{E}_1 = V_1 + \frac{(V_1 - V_2)^2}{2E\lambda^2 g^2 + V_1} + \frac{(V_2 - V_3)^2}{6E\lambda^2 g^2 + V_1} \\ \mathcal{V}_2 &= -V_1 + \mathcal{E}_2 = -V_1 + \frac{(V_1 + V_2)^2}{2E\lambda^2 g^2 - V_1} + \frac{(V_2 + V_3)}{6E\lambda^2 g^2 - V_1} \end{aligned}\right\} \text{A13}$$

(ici $V_1 = V_g$, $V_2 = V_{2g}$ .....)

On observe que le terme correctif $\mathcal{E}$ est toujours positif, il est plus important pour $\mathcal{V}_2$ que pour $\mathcal{V}_1$, il se peut que $\mathcal{V}_2$ soit assez différent de $-V_1$ dans ce cas on peut recommencer le calcul de $\mathcal{V}_2$ en remplaçant au dénominateur $-V_1$ par la première valeur de $\mathcal{V}_2$ trouvée.

Propriétés de $\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$

Les deux tableaux suivants permettent de comparer les valeurs propres calculées au moyen de A.13 aux valeurs propres exactes fournies par le calcul matriciel, et cela pour 4 et 6 faisceaux. La confrontation de ces résultats permettra de dégager des propriétés intéressantes de $\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$. On néglige ici l'absorption.

THEORIE A 4 FAISCEAUX SANS ABSORPTION

COMPARAISON DES VALEURS PROPRES CALCULEES A PARTIR DES RELATIONS ET A LA MACHINE

- TABLEAU I -

Ici $W_i = s_h x t_h$ = pour la réflexion systématique numérotée i. ici $W_i = \frac{E\lambda^2 h^2}{V_i}$		V_1 et V_2 (en volts) par formule A-13	V_1 et V_2 calcul matriciel	Différence
Mg O (200)	W_i			
$V_1 = 7,11$	$W_{-1} = 5$	$V_1 = 7,32$	7,32	
$V_2 = 3,25$	$W_2 = 10$	$V_2 = -5,28$	-5,33	
Ni O (200)				
$V_1 = 11,1$	3,25	11,48	11,52	
$V_2 = 5,88$	6,2	-6,52	-6,52	
Ni O (111)				
5,52	4,3	5,54	5,54	
6,64	3,6	- 2,31	- 2,41	0,10 V
Or (200)				
16,95	2	17,71	17,76	
8,90	4	-6,05	-6,75	0,70 V
Or (111)				
18,59	1,4	19,53	19,63	
10,47	3	-1,23	-3,43	1,80 V

Légende : Les deux valeurs de V_1 sont égales dans tous les cas, Le calcul de V_2 par la formule A-13 devient faux pour $W_{-1} < 3$

./.

THEORIE A 6 FAISCEAUX SANS ABSORPTION

L'expression $\Delta V_{4,6}$ représente la variation de valeur propre lorsque l'on passe de 4 à 6 faisceaux.

- TABLEAU II -

	W_2	V_1 et V_2 (formule A.13)	V_1 et V_2 "machine"	Différence	$V_{4,6}$ machine	$V_{4,6}$ main
MgO (200)	30	7,33	7,33	0	0,01	
		-5,15	-5,27	0,12	0,06	0,13
NiO (111)	10,8	5,70	5,70	0	0,16	0,15
		-1,63	-2,13	0,50	0,18	0,50
Or (200)	11,5	17,78	17,79	0	0,03	0,07
		-5,05	-6,59	1,54	0,16	1,00
Or (111)	7,2	19,60	19,63	0	0,02	0,07
		+0,77	-2,90	3,7	0,53	2,00

Ces deux tableaux permettent de dégager quelques propriétés des valeurs V_1 et V_2.

1) Dans les deux tableaux, on observe que la valeur propre V_1 calculée par la formule A-13 est toujours exacte. Cela veut dire que le couplage des faisceaux faibles entr'eux n'a aucune influence sur ce potentiel propre (qui correspond aux électrons passant près des noyaux atomiques).
2) Pour V_2 le calcul à partir de A.13 est bien meilleur pour 4 faisceaux que pour 6 faisceaux. Cela ne doit pas surprendre car pratiquement, dans le cas de la matrice d'ordre 4, l'hypothèse de Bethe revient à annuler deux éléments de la matrice comme on l'indique sur le schéma.

$$\begin{pmatrix} 0 & U_1 & U_{-1} & U_2 \\ U_{-1} & 0 & U_2 & U_1 \\ U_1 & U_2 & 2g^2 & \underline{0} \\ U_{-2} & U_{-1} & \underline{0} & 2g^2 \end{pmatrix} = A$$

./.

Pour 6 faisceaux, par contre, on annule 12 termes !
La différence notable entre les valeurs de ν_2 calculées au moyen de A.13 et au moyen du calcul matriciel complet montre donc que cette seconde valeur propre est très sensible au couplage des ondes peu excitées entre elles. On observe en outre sur le tableau II que lorsqu'on augmente le nombre de faisceaux la variation de la valeur propre $\Delta\nu_{(4,6)}$ est bien moins importante dans la réalité (calcul machine) que ne le laisse prévoir l'hypothèse de Bethe : le couplage des faisceaux faibles entre eux a donc pour effet de réduire l'influence du couplage de Bethe.

3) Dans la pratique on déduit V_g de $\frac{\nu_1 - \nu_2}{2}$. Si l'on veut utiliser les relations A.13 pour calculer V_g on peut remarquer que les faibles valeurs de $\Delta\nu_{(4,6)}$ conduisent à admettre qu'il est inutile d'utiliser les relations A.13 pour plus de 4 faisceaux. Les valeurs propres ainsi obtenues auront une exactitude suffisante tant que W_{-1} et W_2 seront supérieures à 3.

POIDS DE L'IMPRECISION DES V_h "SYSTEMATIQUES" SUR LA PRECISION DU V_g FINAL.

$$\text{On a} \quad \Delta V_G = \Delta\left(\frac{\nu_1 - \nu_2}{2}\right) = \frac{\Delta(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)}{2}$$

Si l'on ne retient que le premier terme de ε dans A.13 et si l'on néglige ν_i au dénominateur on obtient :

$$\Delta V_g = \Delta \frac{-2 V_1 V_2}{2 E \lambda^2 g^2}$$

et comme on a $V_G = V_1$ et que l'on peut après un premier calcul réinjecter V_1 dans le calcul de ε on obtient :

$$\Delta V_g = -\frac{V_3 \Delta V_2}{E \lambda^2 g^2} \qquad (A.14)$$

./.

qui peut être mis sous la forme plus simple

$$\Delta V_g = - \frac{\Delta V_2}{W_{-1}}$$

Malgré les approximations faites pour parvenir à A.14, les résultats obtenus par cette formule sont assez corrects comme le montre le tableau ci-dessous. ($\Delta V_g / \Delta V_2$ exact est obtenu en faisant varier V_2 de 1 volt dans le calculimachine

	$V_g/V_2 = 1/W_{-1}$	V_g/V_2 Exact
Ni O (111)	- 0,23	-0,22
Or (200)	- 0,50	-0,44

b) <u>Calcul des valeurs propres pour un V_h correspondant à une réflexion d'ordre 2</u> (h = 2g)

Comme dans le cas précédent, calculons les différentes valeurs de s en tenant compte de la nouvelle position de la sphère d'Ewald.

On trouve $2\,ks_1 = -g^2$

$2\,ks_{-1} = 2\,ks_3 = g \times 3g = 3g^2$

$2\,ks_{-2} = 2\,ks_4 = 2g \times 4g = 8g^2$

En appliquant la formule des potentiels dynamiques on trouve

$$U_{11} = \frac{U_1^2}{-g^2 + 2b} + \frac{U_1^2 + U_3^2}{3g^2 + 2b}$$

$$U_{12} = U_{21} = \frac{U_1^2}{-g^2 + 2b} + \frac{2U_1 U_3}{3g^2 + 2b}$$

$2b_i$ valeurs propres qui auront pour expression :

$$2b_1 = U_2 + \varepsilon_1 = U_2 + \frac{(U_1 - U_3)^2}{3g^2 + 2b_1}$$

$$2b_2 = -U_2 + \varepsilon_2 = -U_2 - \frac{2U_1^2}{g^2 - 2b_2} + \frac{(U_1 + U_3)^2}{3g^2 + 2b_2}$$

en faisant

$$2b_1 \# V_g \quad \text{et} \quad 2b_2 \# -V_g$$

./.

ces valeurs propres une fois exprimées en volts prennent la forme

$$\mathcal{V}_1 = V_{2g} + \varepsilon_1 = V_2 + \frac{(V_1 - V_3)^2}{3E\lambda^2 g^2 \cdot V_2} \qquad (A\text{-}15)$$

(Expression qui, on le voit, est indépendante de la réflexion systématique 1)

$$\mathcal{V}_2 = -V_{2g} + \varepsilon_2 = -V_2 - \underbrace{\frac{2V_1^2}{E\lambda^2 g^2 \cdot V_2}}_{*} + \frac{(V_1 + V_3)^2}{3E\lambda^2 g^2 \cdot V_2} + \frac{(V_2 + V_4)^2}{3E\lambda^2 g^2 - V_2} \qquad (A\text{-}15)$$

(* influence de la réflexion d'ordre 1)

Comparons comme dans le cas précédent les valeurs données par la formule A.15 et par l'ordinateur. On voit sur le tableau III que la coincidence est bien moins bonne que dans le cas précédent ce qui est compréhensible, car maintenant on annule 6 termes de la matrice au lieu de deux, lorsque l'on envisage l'approximation de Bethe.

Nous avons noté dans l'avant dernière colonne, l'écart en volts entre la valeur propre calculée par les potentiels de Bethe et par la machine.

- TABLEAU III -

THEORIE SANS ABSORPTION A 5 FAISCEAUX POUR UNE REFLEXION INTENSE D'ORDRE 2

Comparaison des valeurs propres $\mathcal{V}_1$ et $\mathcal{V}_2$ calculées à la main (rel. A.15) et à la machine.

	V_1, V_2, V_3	W_1, W_{-1}, W_3	← $\mathcal{V}_1$ puis $\mathcal{V}_2$ (en Volts) → Formule A15	C.Matriciel	$\mathcal{V}_{M1} - \mathcal{V}_{A15}$
MgO(440)	$V_1 = 4,95$	$W_{+1} = 6,4$	$\mathcal{V}_1 = 2;06$ V	2,06 V	0
	$V_2 = 1,98$	$W_{-1} = 19$	$\mathcal{V}_2 = -2,53$ V	-2,52 V	
	$V_3 = 1$	$W_3 = 95$			
MgO(400)	7,11	-2,2	3,55	3,55	
	3,25	+6,6	-5,18	-4,91	0,27
	1,66	28,4			
NiO(400)	11,10	- 1,44	6,22	6,21	
	5,58	4,34	-9,40	-8,37	1,00
	3,02	16,00			
Or (400)	16,95	- 0,99	10,20	10,22	
	8,90	2,97	-15,25	-12,76	2,49
	5,00	10,1			

./.

On voit que le calcul de ν_1 par (A-15) est toujours exact: il n'en vas pas de même pour ν_2

Représentons maintenant la variation des valeurs propres $\Delta\nu_{5,7}$ lorsque l'on passe de 5 à 7 faisceaux pour quelques cas d'expériences, et confrontons les résultats donnés par la formule A.15 à ceux donnés par l'ordinateur.

	W_{-2}	$(\Delta\nu)_{5,7}$ (A.15)	$(\Delta\nu_{5,7})$ ordinateur
Mg O (400)	39	0,01	0,01
		0,07	0,07
Ni O (222)	14,5	0,09	0,10
		0,43	0,41
Or (400)	15,1	0,11	0,11
		0,56	0,39

TABLEAU IV - Variation de ν_2 lorsque l'on passe de 5 à 7 faisceaux

Ces deux tableaux conduisent aux observations suivantes :

1 - Comme dans le cas précédent, l'approximation de Bethe convient parfaitement pour le calcul de ν_1, cette valeur propre possède en outre la propriété d'être indépendante du couplage du faisceau 1 avec les faisceaux intenses 0 et 2.

2 - Excepté pour des valeurs de W_1 particulièrement grandes, l'approximation de Bethe ne convient pas pour le calcul de ν_2 et l'erreur augmente très vite à partir de $W_1 \leq 1,5$.

On peut toutefois faire le calcul de V_2 à la main en utilisant la formule de correction suivante, trouvée de façon empirique.

$$\Delta_c \nu = \frac{0,22}{W_1^2} \times \nu_2 \quad (\nu_2 \text{ est négatif}) \qquad (A-16)$$

Cette formule est satisfaisante tant que (W_1) est supérieur à 1 comme le montre le tableau ci-dessous qui confronte l'erreur due au calcul de Bethe à la correction $\Delta_c \nu$ fournie par A.16.

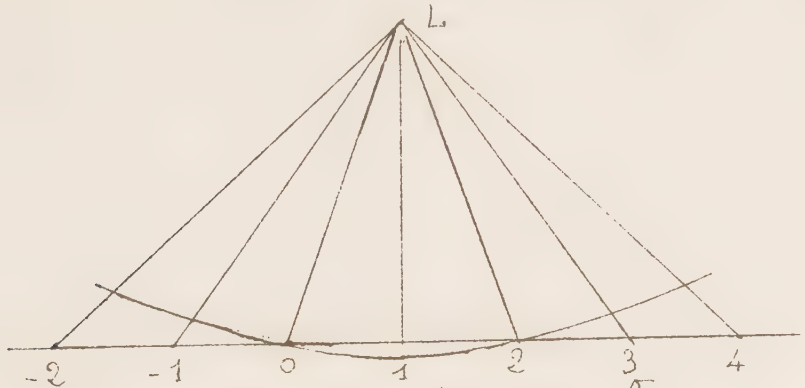
./.

TABLEAU . V.

	W_1	erreur $\mathcal{V}_2$ (Machine - $\mathcal{V}_2$ (A-15))	$\Delta_c \mathcal{V}$ (-A-16)
Ni O (440)	- 3,9	0,07	0,07
Mg O (400)	- 2,2	0,27	0,27
Ni O (400)	- 1,44	1,03	1,00
Ni O (222)	- 2,2	0,45	0,35
Or (400)	- 1	2,5	3;4

Légende : Lorsque les V_h ne varient pas de façon régulière quand l'ordre des réflexions systématiques augmente: comme c'est le cas pour la file (111) du Ni O qui est un cristal ionique C F C; les résultats sont un peu moins bons.

3 - Contrairement à ce que l'on avait trouvé dans le cas d'une réflexion intense d'ordre 1, le passage de 5 à 7 faisceaux conduit à une variation de valeur propre $\Delta V_{5,7}$ dont le calcul à partir de (A.15) est tout à fait convenable comme on le voit sur le tableau IV. C'est que dans la configuration présente, ces faisceaux supplémentaires -2 et +4, plus faibles que les précédants, ne peuvent se trouver dans des conditions de couplage convenables avec d'autres faisceaux que par l'intermédiaire de réflexions d'ordre 5 au moins (voir schéma). On comprend que l'hypothèse de Bethe soit assez bien vérifiée pour ces faisceaux.



↑ Le couplage de ces deux faisceaux correspond à une réflection d'ordre 5 - il est donc faible.

4 - Notons également que les valeurs de ($\Delta \mathcal{V}_{5,7}$) trouvées conduisent à la conclusion suivante : dès que W_{-2} devient inférieur à 20, on est obligé de prendre 7 faisceaux.

POIDS DE L'IMPRECISION DE V_1 ET V_3 SUR L'ERREUR DU V_g CALCULE

Exprimons ΔV_g en fonction du premier terme de ε_1 et ε_2 on obtient :

$$\Delta \nu_g = \Delta \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2} \# -\frac{2}{3} \times \frac{V_1 \Delta V_3 + V_3 \Delta V_1}{E \lambda^2 g^2} + \frac{2 V_1 \Delta V_1}{E \lambda^2 g^2 + V_2}$$

En général $\Delta V_g / V_g$ décroit quand g augmente et comme dans les systèmes cristallins simples qui nous intéressent V_g est décroissant en fonction ~~de~~ g on peut écrire :

$$\Delta V_3 \ll \Delta V_1$$

et l'on trouve :

$$\Delta V_g = \left[\frac{2 V_1}{E \lambda^2 g^2 + \nu_2} - \frac{2 V_3}{3 E \lambda^2 g^2} \right] \Delta V_1$$

$$\Delta V_g \# \frac{2 V_1 \Delta V_1}{E \lambda^2 g^2 |\nu_2|} = B \Delta V_1 \qquad (A.17)$$

Le calcul numérique de B pour les exemples traités plus haut, montre que le poids de l'erreur sur V_1 est important dans la détermination de V_2, il est vrai que la formule A.17 majore un peu les résultats lorsque W_{+1} devient petit. Dans le tableau ci-dessous on a calculé B à l'ordinateur dans quelques cas en procédant comme pour les réflexions de premier ordre.

	W_{+1}	B (A-17)	B(ordinateur)
Mg O (440)	-6,5	0,15	
Ni O (440)	4	0,24	
Mg O (400)	2,6	0,38	0,28
Ni O (400)	1,5	0,53	
Or (400)	1	0,73	0,35

c - Influence de la partie imaginaire des pseudopotentiels de Fourier sur la partie réelle des valeurs propres

Les formules A.13 et A.15 restent valables lorsque les V_g sont complexes. Restons dans le cas des cristaux centro-symétriques et étudions la variation de la partie réelle de $\bar{\varepsilon}$ désormais complexe lorsque l'on admet que le phénomène d'absorption n'est pas négligeable.

Le principe du calcul consiste à séparer parties réelles ε_r et parties imaginaires ε' de $\bar{\varepsilon}$ dans les expressions A.13 et A.15, de calculer la partie imaginaire ε' de $\bar{\varepsilon}$ (qui en général n'est pas petite devant V'_g) et de se servir du résultat pour calculer la variation de ε_r réel dû à l'effet d'absorption. Cette variation sera exprimée par le symbole $\Delta_i \varepsilon$

Cas d'une réflexion du premier ordre

Nous effectuerons le calcul que sur le premier terme du développement de ε. Posons $D = E\lambda^2 g^2$

Pour la première valeur propre, la relation A.13 fournit :

$$\varepsilon_{r_1} + j\varepsilon'_1 = \frac{[(V_1 - V_2) + j(V'_1 - V'_2)]^2}{2D + \vartheta_1 + j\vartheta'_1}$$

$$= \frac{[(V_1 - V_2)^2 - (V'_1 - V'_2)^2 + 2j(V_1 - V_2)(V'_1 - V'_2)] \times [2D + \vartheta_1 - j\vartheta'_1]}{(2D + \vartheta_1)^2 + \vartheta'^2_1}$$

et l'on trouve :

$$\varepsilon_{1r} = \frac{(V_1 - V_2)^2}{2D + V_1} - \frac{(V'_1 - V'_2)^2}{2D + V_1} + \frac{2(V_1 - V_2)(V'_1 - V'_2)\vartheta'_1}{(2D + \vartheta_1)^2}$$

Comme le premier terme représente ε_1 sans absorption, la variation de valeur propre par effet d'absorption est fournie par la relation

$$\Delta_i \varepsilon_1 = \varepsilon_{1r} - \varepsilon_1 = \frac{-(V'_1 - V'_2)^2}{(2D - \vartheta_1)} + \frac{2(V_1 - V_2)(V'_1 - V'_2)\vartheta'_1}{(2D + \vartheta_1)^2} \qquad (A-18)$$

./.

$\mathcal{V}_1$ valeur propre sans absorption : $V_1 + \mathcal{E}$

$\mathcal{V}'_1$ partie imaginaire de la valeur propre $V'_1 + \mathcal{E}'$

que nous allons déterminer

La partie imaginaire de A.13 donne :

$$\mathcal{E}'_1 = \frac{2(V_1 - V_2)(V'_1 - V'_2)}{2D + \mathcal{V}_1} - \frac{(V_1 - V_2)^2 - (V'_1 - V'_2)^2}{(2D + \mathcal{V}_1)^2} \mathcal{V}'_1 \quad (A\,19)$$

On montre que le second terme est petit devant le premier et l'on obtient, compte tenu de A.13

$$\boxed{\mathcal{E}'_1 = \mathcal{E}_1 \times 2 \frac{V'_1 - V'_2}{V_1 - V_2}} \quad (A.20)$$

Pour calculer parties réelles et imaginaires de la seconde valeur propre, il suffit de remplacer dans A.18 et A.19, $\mathcal{V}_1$ par $\mathcal{V}_2$, $V_1 - V_2$ par $V_1 + V_2$, $V'_1 - V'_2$ par $V'_1 + V'_2$.

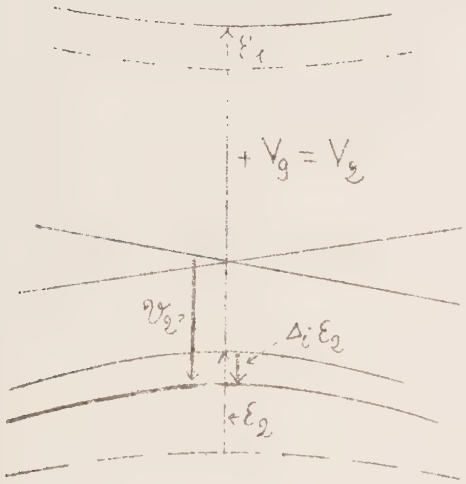
$$\Delta_1 \mathcal{V}_2 = \frac{-(V'_1 + V'_2)^2}{2D + \mathcal{V}_2} + 2 \frac{(V_1 + V_2)(V'_1 + V'_2)}{(2D + \mathcal{V}_2)^2} \mathcal{V}_2 \quad (A\text{-}18\,bis)$$

(Remarquons que le second terme est généralement négatif).

De A.19 on déduit :

$$\mathcal{E}'_2 = \frac{V'_1 + \frac{V'_1 + V'_2}{V_1 + V_2}(2D + \mathcal{V}_2)}{1 + \frac{(2D + \mathcal{V}_2)^2}{(V_1 + V_2)^2}} \quad (A\,19\,bis)$$

V_2 valeur propre réelle sans absorption
si $(2D + \mathcal{V})^2 \gg (V_1 + V_2)^2$ on retrouve une expression semblable à A.20.



Une application numérique de ces relations montre que l'influence de l'absorption sur la première valeur propre $\mathcal{V}_1$ est tout à fait négligeable, alors que sur $\mathcal{V}_2$ cette influence finit par devenir mesurable pour des réflexions de faible indice possédant des V_h importants. Le tableau ci-dessous donne un aperçu des ordres de grandeur de $\Delta_i \varepsilon_2$

Réflexion	$(V_1 + V_2)$ (V)	$(V_1' + V_2')$ (V)	$\Delta_i \varepsilon_2$ (V)
Mg O 200	10,36	0,64	- 0,008
Cu 200	15,30	1,34	- 0,03
Cu 111	17,35	1,44	- 0,05
Au 200	25,85	5,44	- 0,45

Cas d'une réflexion d'ordre 2

Le principe du calcul est le même que dans le cas précédent. Seules quelques approximations diffèrent. Pour la première valeur propre on trouve

$$\Delta_i \varepsilon_1 = \frac{-(V_1 - V_3)^2}{3D + \mathcal{V}_1} + 2\,\frac{(V_1 - V_3)(V_1' - V_3')}{(3D + \mathcal{V}_1)^2} \times \mathcal{V}_1' \qquad (A\text{-}21)$$

avec $\mathcal{V}_1' = V_1' + \varepsilon'$

et $$\varepsilon_1' = \varepsilon_n \times \varepsilon_i \frac{V_2' - V_3'}{V_1 - V_2}$$

./.

Pour la seconde valeur propre on obtient :

$$\Delta_i \varepsilon_2 = \frac{2 V_1'^2}{D - \vartheta_2} - \frac{4 V_1 V_1' \vartheta_2'}{(D - \vartheta_2)^2} - \frac{V_1' + V_3'}{3D - \vartheta_2} + 2 \frac{(V_1 + V_3)(V_1' + V_3')}{(3D + \vartheta_2)^2} \times \vartheta_2' \qquad (A\text{-}22)$$

avec ϑ_2' (généralement négatif) $= -V_2' + \varepsilon_2'$

en admettant : $(3D + V_2)^2 \ll (V_1 + V_3)^2$

on trouve

$$\varepsilon_2' = \frac{\dfrac{2(V_1 + V_3)(V_1' + V_3')}{3D + \vartheta_2} - \dfrac{8 V_1 V_1'}{D - \vartheta_1} - \dfrac{4 V_1^2 V_2'}{(D - \vartheta_2)^2}}{1 - \dfrac{4 V_1^2}{(D - \vartheta_2)^2}} \qquad (A\text{-}23)$$

ϑ_2' étant généralement négatif les 2 premiers termes de $\Delta_i \varepsilon_2$ sont positifs. Les 2 derniers négatifs. $\Delta_i \varepsilon_2$ est positif car les 2 premiers termes sont plus grands.

Donnons quelques valeurs de $\Delta_i \vartheta_1$ et $\Delta_i \vartheta_2$

	W_1	V_1	V_1'	$\Delta_i \vartheta_1$	$\Delta_i \vartheta_2$
Or (440)	1,7	12,8	2,8	-0,014	+ 0,04
Or (400)	1	17	3,03	-0,035	+ 0,44

On voit que l'influence de l'absorption apparaît très brusquement.

Les formules et les résultats montrent qu'en général $\Delta_i \varepsilon$ est de signe contraire à celui de ε .

ANNEXE IV

CALCUL DES PSEUDOPOTENTIELS PROPRES U_i ET DE L'INTENSITE DES CHAMPS D'ONDES SUR CHACUNE DES n DIRECTIONS DE DIFFRACTION

Le calcul des pseudopotentiels propres est obtenu en résolvant l'équation aux valeurs propres

$$(A - U_i I) \times C_i = 0$$

A prenant la forme suivante lorsque l'on indroduit directement le pseudopotentiel dans la matrice

$$\begin{pmatrix} 0 & V_{g_1} & V_{g_2} & & V_{g_i} & V_{g_n} \\ V_{-g_1} & D_1 & V_{(g_2-g_1)} & & & \\ V_{-g_2} & & D_2 & & & \\ & & & D_3 & V_{g_i-g_3} & \\ V_{-g_i} & & & & D_i & \\ V_{-g_n} & & & & & D_n \end{pmatrix} = A$$

V_h peut être complexe

$D_i = (R_i^2 - R_o^2)\ E\ \lambda^2$

ou R_i est la distance de la i^e tache réfractée à la projection du point de Laüe sur le plan réciproque.

Dans nos calculs nous avons négligé l'absorption anormale :

- les valeurs propres et les vecteurs propres ont été calculés par la méthode de Jacobi valable pour les matrices hermitiennes ou réelles symétriques.

Les composantes des vecteurs propres donnent la répartition de l'amplitude de chaque champs d'ondes dans chaque direction de diffraction. Or pour chaque tache diffractée, la réfraction du faisceau d'électrons sépare les faisceaux émergents correspondant aux divers champs d'ondes (définis par les valeurs propres).

./.

Il n'y a donc pas à considérer le battement de ces ondes à la face de sortie du cristal et l'on obtient simplement l'intensité du champs d'ondes i sur la tache diffractée g_j après normalisation sur l'intensité totale sortant du prisme

$$I_g = (C_g^i C_o^{i*}) \times (C_g^i C_o^{i*})^*$$

Cette relation est obtenue en prenant en considération les conditions aux limites sur le dioptre d'entrée et la propriété d'orthogonalité des vecteurs propres pour les matrices hermitiennes. (F. Fujimoto 1959)

La normalisation sur la face de sortie tient compte de l'absorption moyenne des électrons. Cette intensité correspond à l'intensité intégrée de la somme des faisceaux transmis. Elle a pour valeur (voir rel. II-5 bis)

$$\mathbb{I} = 2 I_o \int_0^\infty \frac{d\alpha}{\left(\frac{\mu_o a}{2}\right)^2 + \left(\frac{2\pi\alpha}{\lambda}\right)^2} = I_o \times \frac{\lambda}{\mu_o a}$$

ou I_o est l'intensité incidente.
C'est $\mathbb{I}$ que l'on fait égal à 1

Si l'on veut tenircompte du fait que les champs d'ondes sont différemment absorbés dans le cristal, on peut calculer sans difficultés leurs coefficients d'absorption respectifs μ_i par uneméthode de perturbation, comme le font actuellement la plupart des auteurs (Metherell, Serneels, Lehmpfuhl) il faut toutefois que la partie imaginaire des pseudopotentiels soit assez petite devant la partie réelle (Annxe 3).
On obtient :

$$\mu_i = \mu_o + \mu_i'$$

avec

$$\mu_i' = \frac{2\pi}{E\lambda} \sum_g \sum_h V_{g-h}^i C_h^i C_g^{i*}$$

./.

L'intensité du i^e champ d'ondes réfléchi dans la direction g sera alors donnée par la relation

$$ {}^{i}I_g = {}^{i}I_g\,(S.A.) \times \frac{\mu_0}{\mu_i} = {}^{i}I_g\,(S.A.) \times \frac{V_0'}{V_0' + V_i'} $$

où I (S.A.) représente l'intensité que l'on aurait sans absorption anormale.

Si l'on utilise la microdensitométrie on peut s'intéresser à la hauteur des pics.

On obtient alors en faisant $\alpha = o$ dans la relation II-5bis

$$ I(0) = \frac{4 I_0}{\mathcal{M}^2 a^2} $$

et l'intensité du pic correspondant au champ d'ondes i sur la tache diffractée g devient, lorsque l'on introduit l'absorption anormale :

$$ {}^{i}I_g(0) = {}^{i}I_g(0)\ S.A. \times \frac{\mu_0^2}{\mu_i^2} $$

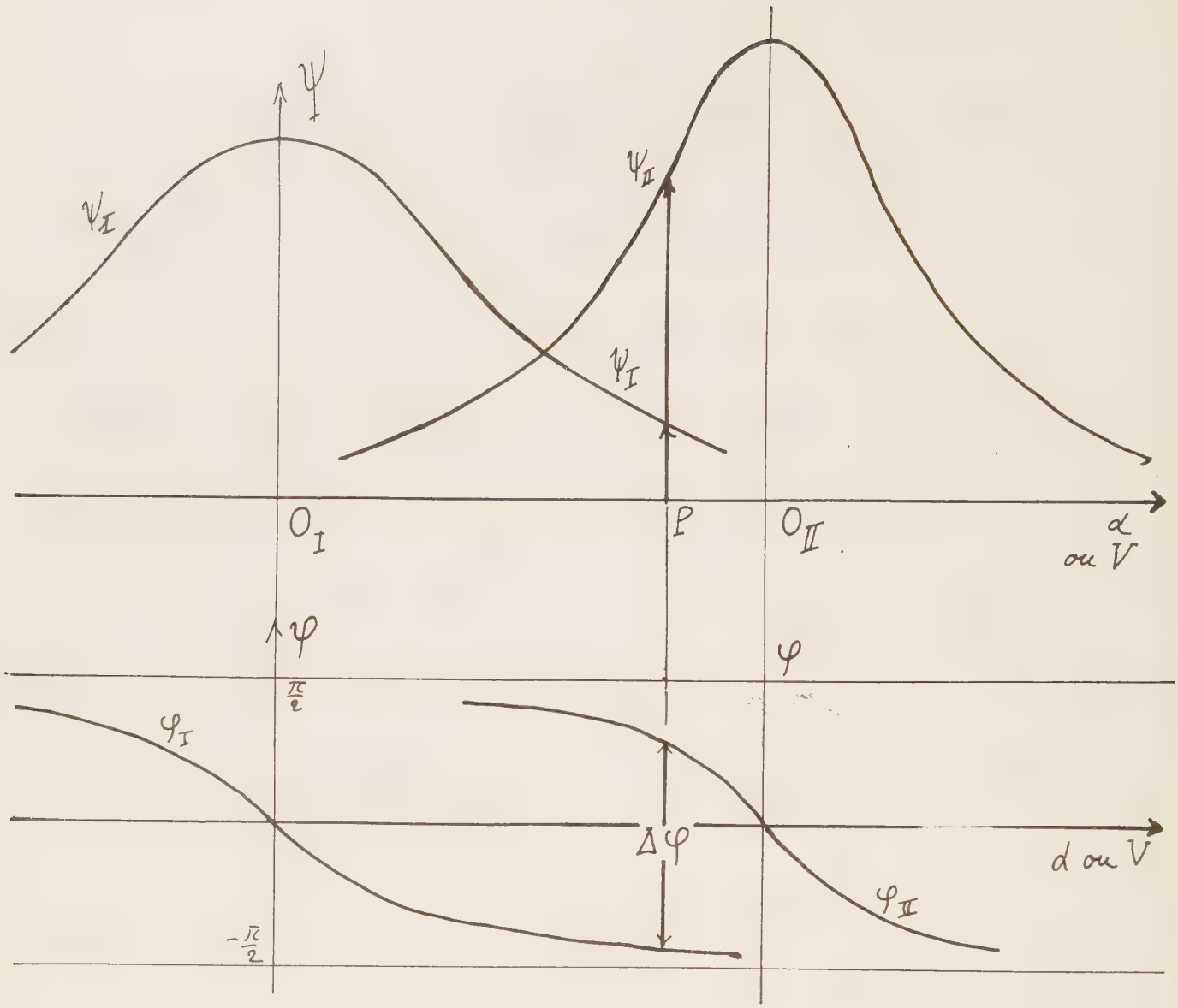
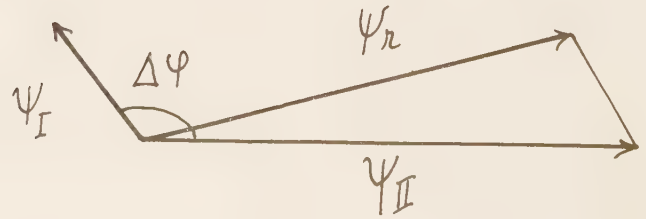


Figure A7 Profil phase-amplitude de chacun des pics réfractés : Au point P l'amplitude résultante est donnée par la construction vectorielle ci-dessous, ou en se servant de l'abaque A-8



ANNEXE V

MESURE DU RECALAGE DES PICS DES DOUBLETS REFRACTES PAR INTERFERENCES

On montre en III-B qu'à chaque valeur propre de l'équation de Schrödinger correspond un angle de réfraction lorsque l'objet diffractant à une forme prismatique. Plaçons nous dans le cas où seulement 2 champs d'ondes sont excités de façon appréciable. Les deux taches réfractées correspondantes se recouvrent partiellement lorsque ν_1' et ν_2' parties imaginaires des valeurs propres ne sont pas négligeables devant $\nu_1 - \nu_2$. Représentons le profil d'amplitude et de phase pour ces deux taches sur la figure A.7 ci-contre, L'amplitude résultante en un point P est fournie par la composition vectorielle des amplitudes ψ_I et ψ_{II} en ce point. Notons que l'abscisse de cette courbe pourrait tout aussi bien être graduée en volts puisque les angles de réfraction α sont proportionnels aux potentiels que l'on désire mesurer. L'écart angulaire entre les 2 pics correspond alors à la différence de valeurs propres (voir III-B). L'abaque de la figure A.8 conçue sur le même principe que celle décrite au chapitre II-B-3 permet d'évaluer aisément le décalage du sommet des pics résultants par rapport à la position de chacun des pics considérés isolément. Elle est constituée de cercles directement gradués en valeur de θ (voir II-B-3b).

A gauche un cercle donne en coordonnées polaires la courbe $\psi_I(\varphi_I)$ pour la tache réfractée dont le centre est le plus intense.

A droite, et tangent au 1er cercle en Ω , un faisceau de cercles donne les courbes $\psi_{II}(\varphi_{II})$ pour l'autre tache.

Utilisation de l'abaque

On fait intervenir :

- Le rapport des hauteurs des 2 pics qui interfèrent
- Le coefficient d'absorption de chacun des champs d'ondes
- La mesure (voir III-B-4) de la différence des valeurs propres.

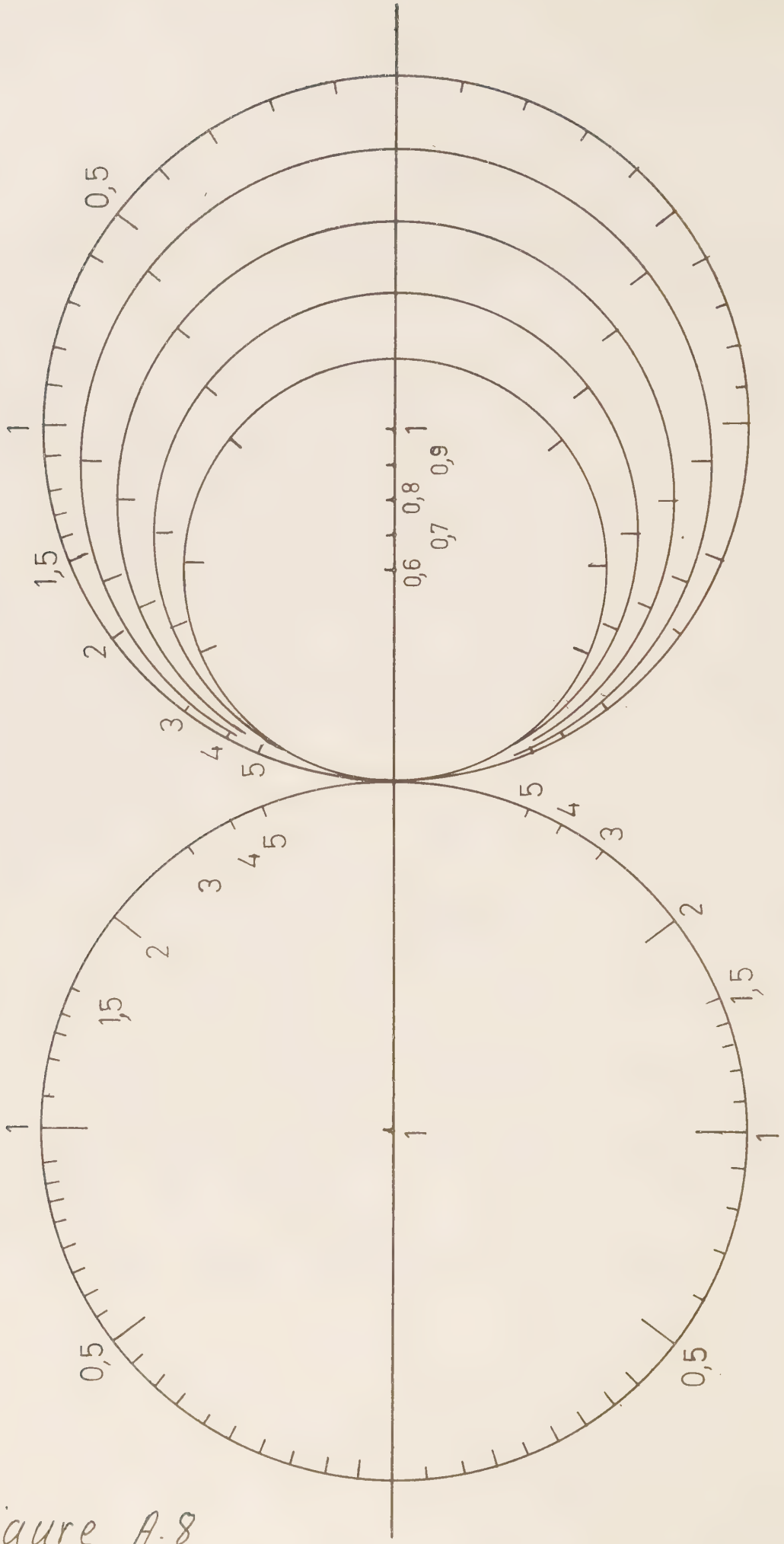


Figure A.8

Ces données sont tirées soit du calcul, soit de l'expérience.

1 - Choix du cercle du faisceau II

Chaque cercle du faisceau II est caractérisé par un nombre (proportionnel à son diamètre) qui est inscrit en face de son centre. On choisira le cercle dont le nombre est le plus proche possible de la quantité.

$$\sqrt{\frac{I_{II}(0)}{I_{I}(0)}}$$

$I_{II}(0)$ Intensité au centre de la tache I

2 - Correspondance entre les volts et les valeurs de Θ de la graduation

Les coefficients d'absorption μ_I et μ_{II} ou si l'on préfère les parties imaginaires des valeurs propres ν'_I et ν'_{II} permettent d'établir pour chaque cercle la correspondance entre Θ et la mesure de ν on a :

$$\frac{V_I}{\nu'_I} = \theta_I \quad \text{et} \quad \frac{V_{II}}{\nu'_{II}} = \theta_{II}$$

V_I par exemple définit l'abscisse en volt du point P à partir de l'origine O_I voir figure A.7

3 - Représentation du point P sur les cercles I et II

On place P en O_{II} par exemple et on exprime l'abscisse de P dans le système I, on a

$$\theta_I = \frac{\nu_1 - \nu_2}{\nu'_I}$$

Lorsque l'on fait circuler P la relation :

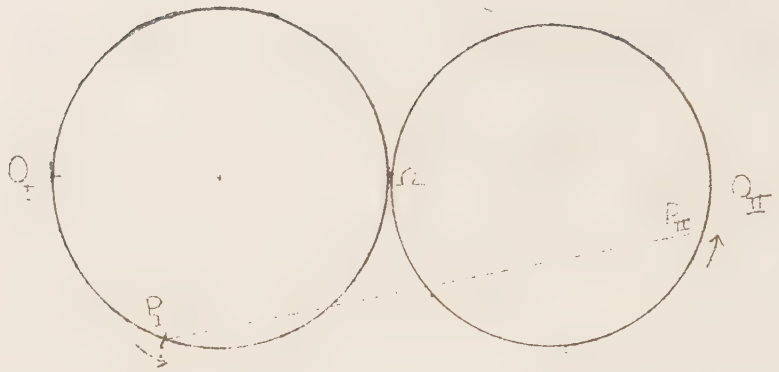
$$\alpha_I = \nu_I \theta_{II} - \nu_2$$

conduit aux expressions :

$$\Delta V_I = - \Delta V_{II}$$

soit : $$\Delta \theta_{II} = - \Delta \theta_I \times \frac{\nu'_I}{\nu'_{II}}$$

En pratique lorsque P se déplace sur la figure A.7 les points P_I et P_{II} qui le représentent sur les cercles I et II tournent dans le même sens et la distance $P_I P_2$ est proportionnelle à l'amplitude résultante en P.



4 - Mesure du décalage des pics

Le déacalage du pic I par exemple est donné par la position du point P_I la plus proche de O_I pour laquelle $P_I\ P_{II}$ est maximum:

$$\Delta\nu_1 = O_I P_I \times \nu'_I$$

Lorsque :

$$\theta_I = \frac{\nu_1 - \nu_2}{\nu'_1} \quad \text{ou} \quad \theta_{II} = \frac{\nu_1 - \nu_2}{\nu'_2}$$

sont supérieurs à 5, on peut fort bien adopter la méthode simplifiée décrite en II B 3e3. Formulons la pour la dérive du pic I par exemple :

La dérive du pic I est représentée par le point P'_1 donné par l'intersection du cercle I et de la droite définie par le point P_{II} représentant $(V_I - V_2)$ et le centre du cercle II (pour le pic II on fait le même raisonnement en changeant les indices II en 1 et I en II).

CONCLUSIONS QUALITATIVES

L'observation de la première figure et de l'abaque conduisent aux résultats qualitatifs suivants :

1) Entre les 2 pics l'amplitude est bien souvent inférieure à l'amplitude de l'un des pics dans cette région le déphasage étant souvent nettement supérieur à $\pi/2$. C'est ce qui explique pourquoi les doublets sont toujours fort bien différenciés.

R E F E R E N C E S

H.J. ALTENHEIN, K. MOLIERE (1954) Z.Phys. 139-113

H.A. BETHE (1928) Ann. Phys. Lpz 87,55

R. BUHL (1959) Z.Phys. 155, 395

EWALD (1931) HERMANN Strukturbericht Akademische verlagsgesellschaft MBH/Leipzig (1931)

FERRIER et MURRAY (1968) Britt J. of Appl. Phys. 2,1 p. 207

F. FUJIMOTO (1959) J. Phys. Soc. Japan 14, 1558

R.D. HEINDENREICH (1949) J. Appl. Phys. 20, p. 993

R.D. HEINDENREICH (1964) Fundamentals of transmission electron mycroscopy - Interscience publischers - John Miley son

G. HONJO (1953) J. Phys. Soc. Jap. 8, 6, p. 776

A. HOWIE, M.J. WHELAN - Proc. Roy. Soc. A 263 217

Y. KAMIYA (1963) Jap. J. Appl. Phys. 2, 386

M. KELLER (1961) Z. Phys. 164, 274

N. KATO (1952) J. Phys. Soc. Japan 7 - p. 397

M. KREUTLE, G.MEYER-EKMSEN (1971) Phys. Sta. Sol. (a) 111

G. LEHMPFUHL, K. MOLIERE (1962) J. Phys. Soc.Japan 17, Suppl. B II 1303

G. LEHMPFUHL, REISSLAND (1968) Z Naturforsch. 23a, 544

G. LEHMPFUHL (1972) Z Naturforsch 27a 425-453

C.H. MAC GILLAVRY (1940) Physica 7, 329

J.F. MENADUE (1972) Acta Cryst. A.28-1

A.J.F. METHERELL et R.M. FISCHER (1969) Phys. Stat. Sol. 32 - 551

S. MIYAKE, K. FUYIWARA, K. SUZUKI (1963) J. Phys. Soc. Japon 18, 1306

K. MOLIERE (1939) Ann. Phys. Leipzig 34, 461

K. MOLIERE, H. NIEHRS (1954) Z. Fur Physik. 137, 445

K. MOLIERE, H. NIEHRS (1955) Z. Phys. 140, p. 581

G. MOLLENSLEDT, M. KELLER (1957) Z. Phys., 148, p. 34

H. NIEHRS (1959) Z. Naturf. 14a. 504

RADI (1970) Acta Crystal. A 26-41

D. RENARD, P. CROCE, M. GANDAIS et M. SAURIN (1971) Phys. Stat. Sol (b) 47 p. 411

./.

J.P. RIVIERE Thèse de spécialité Paris (1966) Contribution à l'Etude de la réfraction des électrons dans les cristaux

J.P. RIVIERE, P. HAYMANN (1969) - C.R. Acad. Sc. t. 269 p.374 série B

L. STURKEY (1957) Acta Cryst. 10, 858

H. TOMITA, M. SAVELLI (1968) C.R. Acad. Sc. Paris t.267 p. 580

R. UYEDA, M. MOYOYAMA (1965) Jap. of Appl. Phys. 4, 7 p. 498

H. YOSHIOKA (1957) J. Phys. Soc. Japan 12 p. 618

WHYCKOFF (1931) The structure of crystal. The Chimical Catalog. Company, New York.

PLANCHE 1

a, b - Réfraction du faisceau dans un prisme de calcite à quelques degrés de l'incidence rasante :

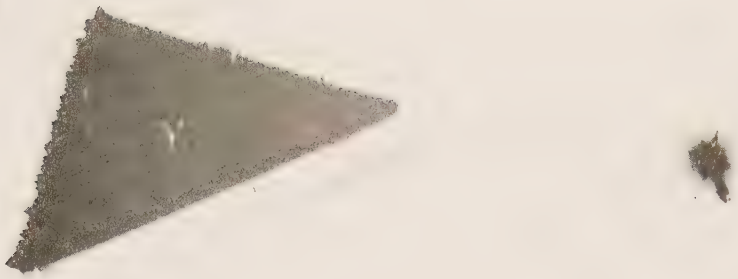
a - tache focalisée

b - tache défocalisée

c - Réfraction dans le cuivre. Lorsqu'il existe de nombreux prismes notamment dans le cas de l'attaque chimique la défocalisation du faisceau permet de distinguer les diverses réfractions et de choisir les prismes favorables aux mesures.

d - On peut distinguer des cristaux d'orientation très voisines (Calcite). Si le diagramme était focalisé les 3 taches réfractées se brouilleraient.

Planche 1

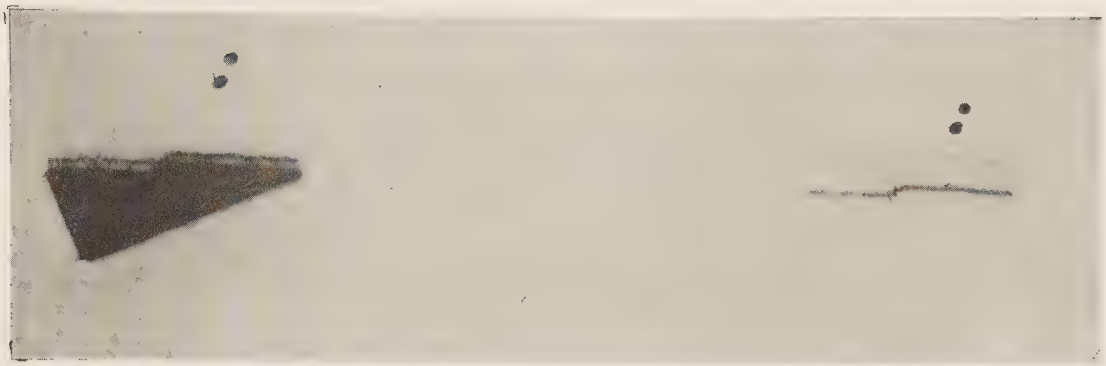


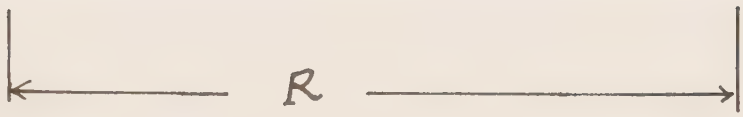
. a, b

. c

. d

Planche 2





Une irrégularité de l'échantillon de NiO permet de calculer la longueur de diffraction du diagramme délocalisé. Ici on peut mesurer R(200).

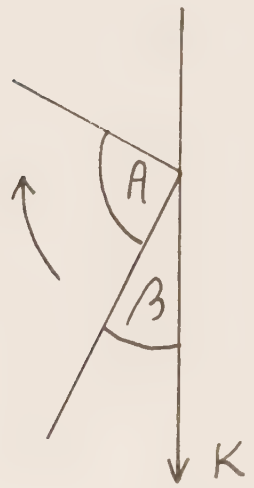
Remarquer que la frange réfractée sur la tache (000) n'est pas rectiligne. Cette fluctuation de S provient très probablement de l'effet de contraste de phase (Chap II-B-3), La couche de contamination n'étant pas parfaitement constante. (Le grossissement de l'image d'ombre étant de l'ordre de 200 × 3, on observe ici une très grande étendue de l'échantillon.)

Planche 3

Exemple de mesures de δ pour différentes valeurs de β.

$\beta = 4,7°$ (Réfraction dans KBr)

$5,6°$



$7,4°$

On détermine l'angle du prisme et l'ordre de valeur du PIM en superposant à l'abaque de la planche 4 la courbe $\log \delta(\beta)$ dont on donne des exemples figure IV-6 et IV-10

$8,8°$

$10,6°$

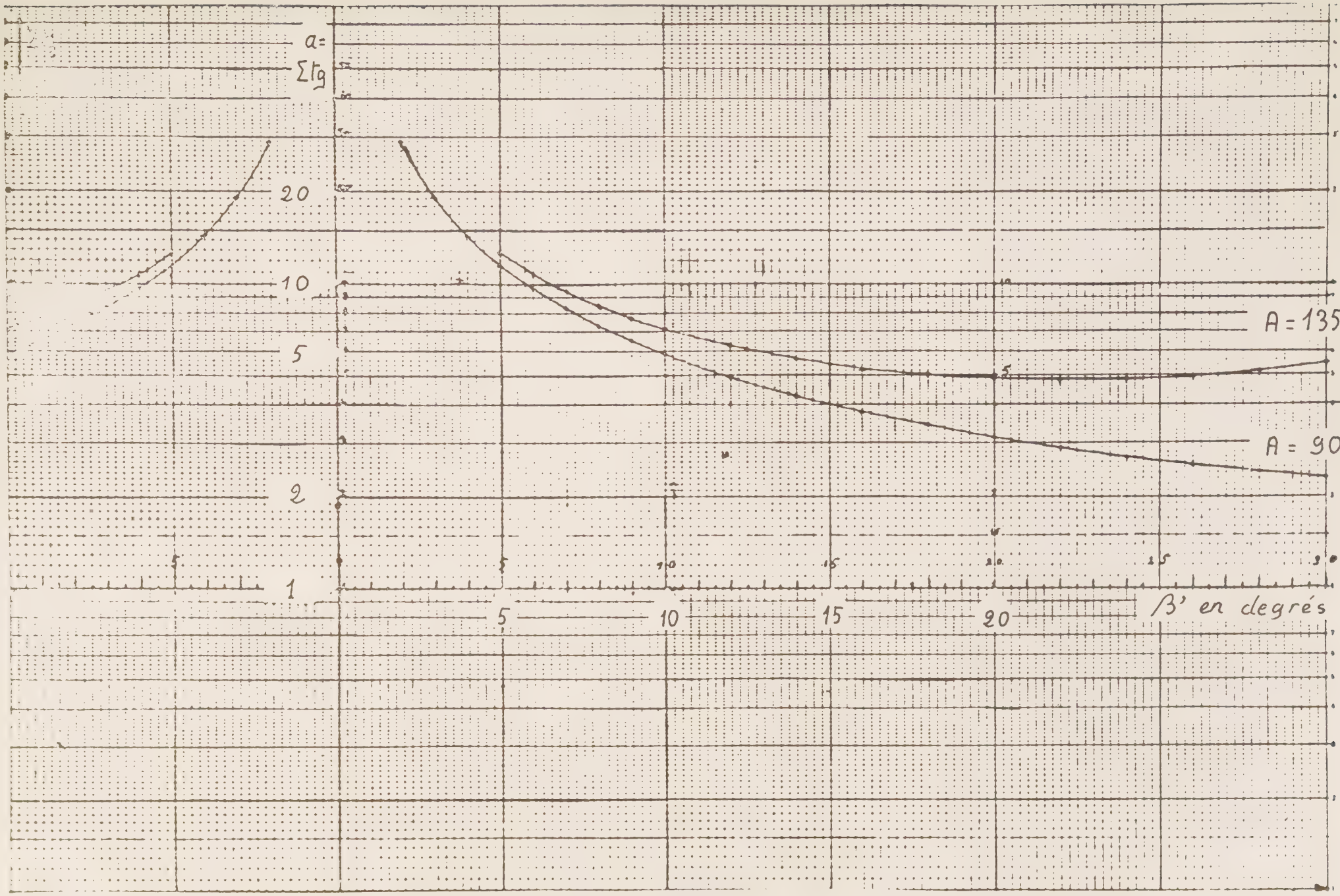
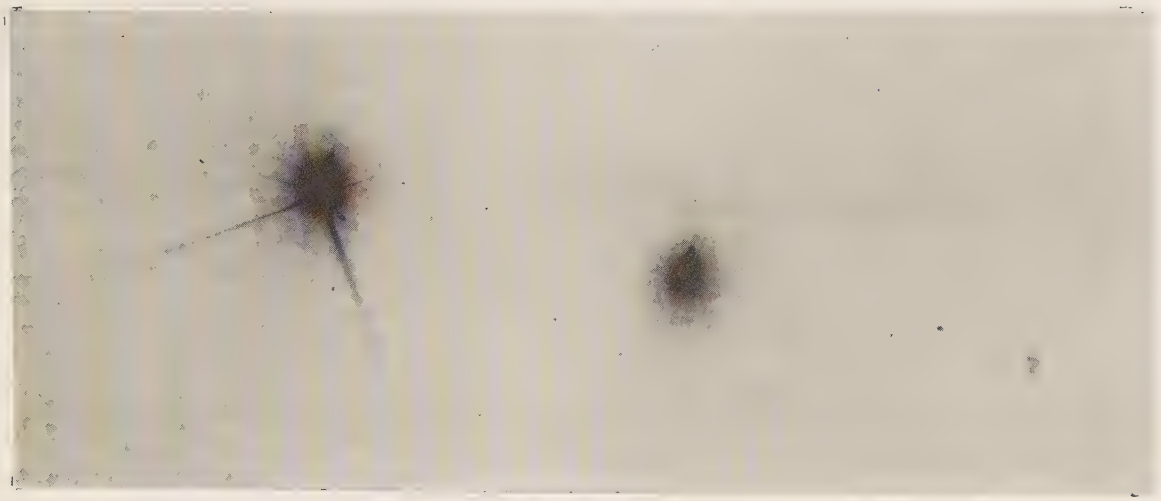
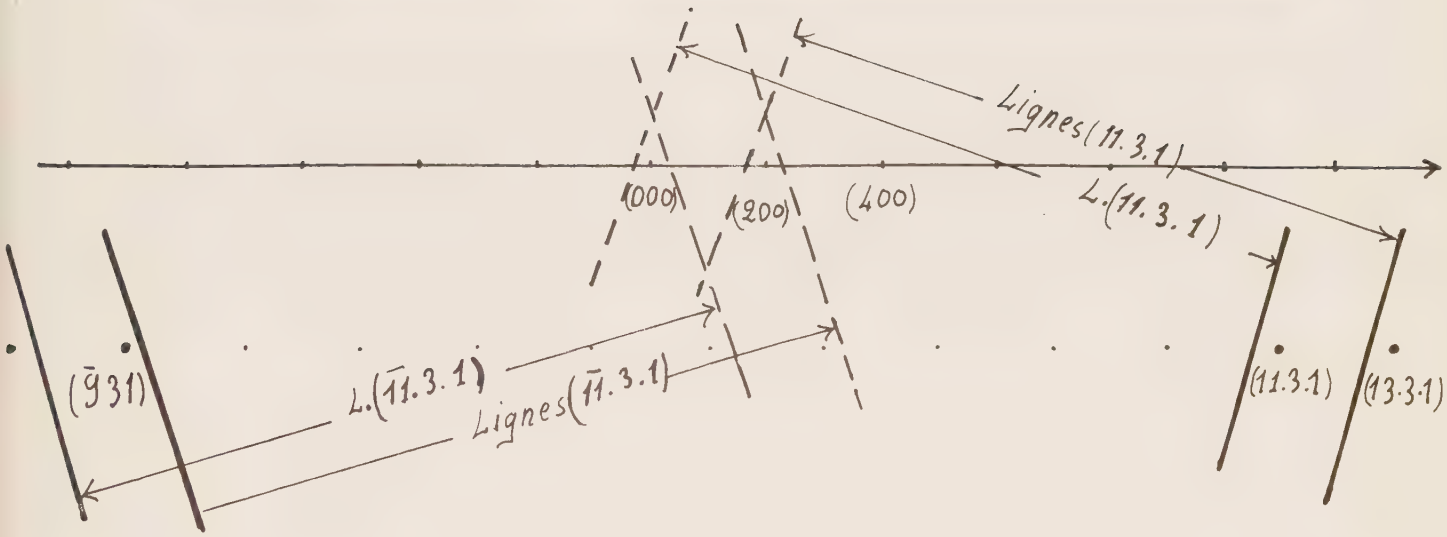


Planche 4

Planche 5





A l'approche des conditions de Bragg sur la réflexion 6, les lignes de Kikuchi d'indice 6 disparaissent. Les deux taches 0 et 6 (ici 200) sont alors le centre de deux diagrammes de Kikuchi distincts. Le schéma joint à la photo propose l'une des deux indexations vraisemblables des lignes : Il s'agisait de lignes (11.3.1)

Planche 6

Les lignes de Kikuchi relatives à une réflexion apparaissent lorsque cette réflexion ne correspond pas aux conditions de Bragg (1e photo) et surtout (2e photo) lorsqu'apparaissent des intéractions accidentelles intenses.

Planche 7

Réflexions $(2\bar{2}0)$ dans la calcite.
Le cristal étant courbé, intensités et valeurs propres varient d'un point à l'autre de l'arête.
On montre chapitre IV-C-3 que ces variations sont compatibles entr'elles.

ACADÉMIE DE PARIS

UNIVERSITÉ DE PARIS VI

4, Place Jussieu - 75230 PARIS-CEDEX 05

SERVICE DE LA SCOLARITE

Bureau des Enseignements du 3e cycle

TÉLÉPHONE 336-25-25 · 325-12-21

PERMIS D'IMPRIMER

DOCTORAT : ES SCIENCES

THESE DE : PHYSIQUES

NOM : Monsieur RIVIERE

Prénoms : Jean-Pierre

né le 12 Avril 19 39 à Villiers Dépt : Vienne

1ère THESE : " Etude critique d'une méthode de mesures du pseudopotentiel cristallin au moyen de la réfraction des électrons rapides dans les prismes.

2e THESE (Propositions faites par l'Université) :

PRESIDENT.M.AUTHIER

EXAMINATEURS...PHILIBERT

HAYMANN

ACADEMIE DE PARIS

Vu et Approuvé

PARIS, le 26 JUIN 1973

Le Président

de l'Université de PARIS VI

Sc 3e c. 72-09